

放射性廃棄物地中処分場の 立地選定に関する工学的研究

昭和 52 年 9 月

森 澤 眞 輔

放射性廃棄物地中処分場の 立地選定に関する工学的研究

昭和52年9月

森 澤 眞 輔

目 次

| | |
|-------------------------------|----|
| 第1章 緒 論 | 1 |
| 1.1 はじめに | 1 |
| 1.2 諸外国における放射性廃棄物処分の現状 | 6 |
| 1.2.1 廃棄物の処分方法 | 6 |
| (1) 地中処分 | 6 |
| (2) 海洋処分 | 7 |
| (3) 宇宙処分 | 8 |
| (4) 消滅処分 | 8 |
| (5) その他の処分 | 8 |
| (6) 各処分法の比較 | 9 |
| 1.2.2 各国の廃棄物処分方針 | 9 |
| 1.2.3 放射性廃棄物地中処分の実際 | 11 |
| (1) 固体廃棄物の地中処分 | 11 |
| (2) 液体廃棄物の地中処分 | 14 |
| (3) 気体廃棄物の地中処分 | 15 |
| 1.2.4 放射性廃棄物地中処分の経済性 | 15 |
| 1.3 我国における放射性廃棄物管理の現状 | 17 |
| 1.4 本研究の目的 | 18 |
| 参 考 文 献 | 22 |
| 第2章 放射性核種の地中移動に関する理論的研究 | 28 |
| 2.1 概 説 | 28 |
| 2.2 放射性核種の地下水での存在状態 | 28 |
| 2.3 放射性核種の交換平衡 | 30 |
| 2.3.1 イオン交換の熱力学 | 30 |
| 2.3.2 放射性核種の分配係数値 | 32 |
| (1) 分配係数の定義 | 32 |
| (2) 分配係数値の測定方法 | 33 |
| (3) 分配係数の工学的意味 | 34 |
| (4) 分配係数に関する従来の研究 | 34 |
| 2.4 放射性核種の地中移動に関する従来理論 | 36 |
| 2.4.1 イオン交換塔の理論 | 36 |
| 2.4.2 Frontal Analysis | 38 |
| 2.4.3 井上の理論 | 41 |
| 2.4.4 井上の理論の通気層への拡張 | 42 |

| | | |
|-------|--|----|
| 2.4.5 | 各理論の比較 | 43 |
| 2.5 | 通気層における放射性核種の移動に関する理論 | 43 |
| 2.5.1 | 土壌水分の移動 | 44 |
| 2.5.2 | 放射性核種の移動 | 45 |
| 2.5.3 | 従来の理論との関係 | 46 |
| | (1) 帯水層における理論との関係 | 46 |
| | (2) 通気層への井上の拡張理論との関係 | 46 |
| 2.6 | まとめ | 47 |
| | 参考文献 | 49 |
| 第3章 | 放射性核種の地中移動に関する実験的検討 | 53 |
| 3.1 | 概説 | 53 |
| 3.2 | 地下水中の無機塩が分配係数値に及ぼす効果 | 53 |
| 3.2.1 | 地下水と土壌との相互作用 | 53 |
| | (1) 炭酸カルシウムの飽和平衡 | 53 |
| | (2) 土壌の分類 | 55 |
| 3.2.2 | 地下水とコンクリートとの相互作用 | 57 |
| | (1) セメント固化体からの無機塩の浸出 | 58 |
| | (2) セメント固化体からの放射性核種の浸出 | 59 |
| 3.2.3 | 地下水無機塩による分配係数値の変化 | 60 |
| 3.2.4 | その他の環境因子による分配係数値の変化 | 64 |
| | (1) 核種・土壌による変化 | 64 |
| | (2) 陽イオン交換容量との相関 | 65 |
| | (3) 通水速度の影響 | 65 |
| | (4) 飽和度の影響 | 65 |
| | (5) 核種の存在状態の影響 | 67 |
| | (6) 測定方法の影響 | 68 |
| 3.2.5 | まとめ | 68 |
| 3.3 | 非イオン状放射性核種の地中移動 | 69 |
| 3.3.1 | 実験方法 | 69 |
| | (1) ^{90}Y の分離 | 69 |
| | (2) 存在状態の確認 | 70 |
| | (3) ^{90}Y の土壌およびイオン交換樹脂への収着特性 —バッチ法— | 70 |
| | (4) ^{90}Y の土壌およびイオン交換樹脂への収着特性 —カラム法— | 70 |
| 3.3.2 | 実験結果 | 71 |
| | (1) ^{90}Y の存在状態 | 71 |
| | (2) ^{90}Y の収着特性 | 72 |

| | |
|---------------------------------|-----|
| (3) ^{90}Y の移動特性 | 73 |
| 3.3.3 結果の考察 | 74 |
| 3.3.4 まとめ | 76 |
| 3.4 イオン状放射性核種の地中移動 | 77 |
| 3.4.1 単一核種の移動 | 77 |
| (1) 実験方法 | 77 |
| (2) 実験結果と考察 | 78 |
| (3) まとめ | 83 |
| 3.4.2 多核種が共存する場合の移動 | 84 |
| (1) 実験方法 | 84 |
| (2) 実験結果と考察 | 85 |
| (3) まとめ | 87 |
| 3.4.3 核種の地中移動に影響を及ぼす要因 | 88 |
| 3.5 帯水層模型における放射性核種の移動 | 89 |
| 3.5.1 実験方法 | 90 |
| (1) 模型帯水層の概要 | 90 |
| (2) 模擬固化体の作製 | 91 |
| (3) 地層内の水流流況 | 91 |
| (4) 地層内での核種の移動 | 92 |
| 3.5.2 地層の特性 | 92 |
| (1) 地層流入・出水の水質変化 | 92 |
| (2) 地層内の水流流況 | 92 |
| (3) 地層間隙水の拡散特性 | 94 |
| 3.5.3 模型地層内での核種の移動 | 96 |
| (1) 核種の水中濃度分布 | 96 |
| (2) 核種の土壌中濃度分布 | 99 |
| (3) 濃度分布の定常性 | 99 |
| 3.5.4 核種分布の予測 | 101 |
| (1) 数値解による方法 | 101 |
| (2) 井上の理論による方法 | 103 |
| 3.5.5 考 察 | 106 |
| 3.5.6 ま と め | 107 |
| 3.6 通気層模型における放射性核種の移動 | 109 |
| — 地層浸透液中に放射性核種が含まれる場合 — | |
| 3.6.1 実験方法 | 109 |
| (1) 実験装置の概要 | 109 |
| (2) 地層内飽和度の変化 | 111 |

| | | |
|-------|-------------------------------------|-----|
| | (3) 地層内温度の変化 | 111 |
| | (4) 地層間隙水の拡散 | 112 |
| | (5) 土壌水分移動特性値の推定 | 112 |
| | (6) 放射性核種の地層内分布 | 112 |
| 3.6.2 | 地層の特性 | 113 |
| | (1) 温度分布および地層流出水の水質変化 | 113 |
| | (2) 飽和度の変化 | 113 |
| | (3) 地層間隙水の拡散特性 | 114 |
| | (4) 土壌水分の移動特性値 | 116 |
| 3.6.3 | 模型地層内での核種の移動 | 117 |
| | (1) ^{90}Y の地層模型からの流出 | 117 |
| | (2) ^{90}Sr の地層内分布 | 117 |
| | (3) ^{60}Co の地層内分布 | 118 |
| 3.6.4 | 核種の地層内分布の予測 | 119 |
| | (1) 井上の拡張理論による方法 | 119 |
| | (2) 数値解による方法 | 119 |
| 3.6.5 | 考察 | 122 |
| 3.6.6 | まとめ | 124 |
| 3.7 | 通気層模型における放射性核種の移動 | 124 |
| | — セメント固化体中に放射性核種が含まれる場合 — | |
| 3.7.1 | 実験方法 | 125 |
| | (1) 実験装置の概要 | 125 |
| | (2) 模擬セメント固化体の作製 | 126 |
| | (3) 地層流出水中の水質変化 | 126 |
| | (4) 地層内飽和度の変化 | 126 |
| | (5) 地層内温度の変化 | 126 |
| | (6) ^{90}Sr の地層内分布 | 126 |
| 3.7.2 | 地層の特性 | 127 |
| | (1) 地層流出水の水質変化 | 127 |
| | (2) 地層内温度・飽和度の変化 | 128 |
| 3.7.3 | 模型地層内での核種の移動 | 128 |
| | (1) 三重水素水の地層からの流出 | 128 |
| | (2) ^{90}Y の地層からの流出 | 128 |
| | (3) ^{90}Sr の地層内濃度分布 | 128 |
| 3.7.4 | 数値解析による地層内 ^{90}Sr 濃度分布の予測 | 129 |
| | (1) 基礎式と数値解法 | 129 |
| | (2) 初期条件および境界条件 | 129 |

| | |
|-------------------------------|-----|
| (3) 計算結果 | 130 |
| 3.7.5 考察 | 131 |
| 3.7.6 まとめ | 135 |
| 3.8 まとめ | 136 |
| 参考文献 | 138 |
| | |
| 第4章 放射性廃棄物地中処分場の立地選定 | 143 |
| 4.1 概説 | 143 |
| 4.2 安全性の評価方法 | 143 |
| 4.2.1 安全性評価の手順と仮定 | 144 |
| 4.2.2 評価方法の定式化 | 144 |
| (1) 放射性核種の漏出 | 145 |
| (2) 放射性核種の地層中での移動と自然減衰 | 145 |
| (3) 放射性核種の帯水層中での拡散・希釈 | 146 |
| (4) 公共水域への流出と拡散・希釈 | 147 |
| (5) 生物による放射性核種の濃縮 | 148 |
| (6) 人体の受ける内部被曝線量 | 148 |
| 4.2.3 内部被曝線量の推定 | 149 |
| (1) 放射性核種の地中への移行量 | 149 |
| (2) 海へ流出する放射性核種量 | 150 |
| (3) 飲料水、海産物および農産物中の核種濃度 | 150 |
| (4) 内部被曝線量 | 152 |
| 4.2.4 地中処分の安全性 | 153 |
| (1) 個人線量 | 153 |
| (2) 国民線量 | 154 |
| 4.2.5 まとめ | 155 |
| 4.3 地中処分場の立地条件 | 156 |
| 4.3.1 感度解析による地中処分場の立地条件 | 157 |
| (1) 基礎式 | 157 |
| (2) 感度計算 | 158 |
| (3) 計算結果 | 159 |
| (4) 立地条件の検討 | 161 |
| 4.3.2 評価図表による立地条件の比較 | 163 |
| (1) 評価図表の数学的基礎 | 163 |
| (2) 評価図表と使用例 | 163 |
| (3) 評価図表の意義 | 165 |
| 4.3.3 安全性の簡易評価法 | 165 |

| | |
|------------------------------|-----|
| (1) 近似計算法 | 166 |
| (2) 安全性の評価 | 167 |
| 4.3.4 立地条件の工学的改善 | 168 |
| 4.3.5 まとめ | 168 |
| 4.4 既設原子力施設の安全性評価 | 169 |
| 4.4.1 調査対象施設および調査方法 | 169 |
| 4.4.2 評価の前提と方法 | 170 |
| (1) 評価の前提条件 | 170 |
| (2) 評価方法 | 170 |
| 4.4.3 原子力施設の特性 | 172 |
| 4.4.4 評価の結果 | 175 |
| (1) 我国の廃棄物保管場の安全性 | 175 |
| (2) 諸外国の廃棄物地中処分場の安全性 | 176 |
| 4.4.5 安全性の比較 | 177 |
| 4.4.6 まとめ | 177 |
| 4.5 電算機による地中処分場の最適立地選定 | 178 |
| 4.5.1 評価の前提と評価方法 | 179 |
| 4.5.2 最適立地場所の選定 | 180 |
| (1) 想定した原子力施設の特性 | 180 |
| (2) 立地選定 | 182 |
| 4.5.3 考察 | 184 |
| 4.5.4 まとめ | 185 |
| 4.6 地中処分場の立地要件 | 185 |
| 4.6.1 評価の前提 | 186 |
| 4.6.2 立地要件設定の数学的基礎 | 186 |
| (1) 基礎方程式 | 186 |
| (2) 数値解法 | 187 |
| (3) 数値計算 | 188 |
| 4.6.3 立地要件の設定と土地利用の制約 | 190 |
| 4.6.4 立地要件の変更 | 191 |
| (1) 拡散係数 | 191 |
| (2) 透水係数 | 191 |
| (3) 分配係数 | 192 |
| (4) 地層の空隙率 | 193 |
| 4.6.5 まとめ | 193 |
| 4.7 まとめ | 194 |
| 参考文献 | 196 |

| | |
|-----------------------------------|-----|
| 第5章 地中処分場周辺のモニタリング | 202 |
| 5.1 概説 | 202 |
| 5.2 地中処分場に必要モニタリングの特性 | 203 |
| 5.2.1 地下水汚染の特徴 | 203 |
| 5.2.2 地中処分場に必要モニタリング | 204 |
| 5.2.3 地中処分場のモニタリング例 | 206 |
| 5.3 モニタリング項目の選定 | 209 |
| 5.3.1 考えられるモニタリング項目 | 210 |
| 5.3.2 モニタリング項目と内部被曝線量 | 212 |
| 5.3.3 モニタリング項目の選定 | 214 |
| 5.4 核種移動の先行指標 | 218 |
| 5.4.1 ^{90}Y の利用 | 218 |
| 5.4.2 Ca + Mg 濃度の利用 | 221 |
| 5.4.3 pHの利用 | 221 |
| 5.4.4 陰イオン(塩素イオン)の利用 | 221 |
| 5.5 モニタリング網の配置 | 222 |
| 5.5.1 基本的考え方 | 222 |
| 5.5.2 配置の手法 | 223 |
| 5.5.3 配置例 | 225 |
| 5.5.4 考察 | 229 |
| 5.6 まとめ | 229 |
| 参考文献 | 231 |
| 第6章 結論 | 234 |
| 6.1 本研究の総括 | 234 |
| 6.2 本研究の問題点と将来の研究課題 | 238 |
| 6.3 謝辞 | 239 |
| 付録 1. 世界の放射性廃棄物処分実績中に占める地中処分の位置づけ | 240 |
| 2. 第4章3節・評価図表の数学的基礎に関する補遺 | 242 |
| 3. 原子力施設の安全性調査に用いた調査表 | 245 |

表 の リ ス ト

| | |
|--------|--|
| 表-1.1 | 世界のエネルギー資源埋蔵量 |
| 表-1.2 | 原子力、火力の発電コストの比較 |
| 表-1.3 | 原子力発電長期計画の推移 |
| 表-1.4 | 電源別電力供給計画 |
| 表-1.5 | 原子力施設からの放射性廃棄物の発生量 |
| 表-1.6 | 各国の中・低レベル放射性廃棄物の最終処分法 |
| 表-1.7 | 放射性固体廃棄物の地中処分の経済性 |
| 表-1.8 | 廃棄物最終処分法のコスト比較例 |
| 表-2.1 | 各理論の特性比較 |
| 表-2.2 | 通気層における放射性核種移動を予測する理論の分類 |
| 表-3.1 | 水道水と土壌との相互作用 |
| 表-3.2 | 実験に用いた水道水の代表的水質 |
| 表-3.3 | 試料土壌の性質と区分 |
| 表-3.4 | セメント固化体供試体の性質 |
| 表-3.5 | セメント固化体からの放射性核種の浸出速度 |
| 表-3.6 | 実験に用いた放射性核種とその濃度条件一覧 |
| 表-3.7 | 分配係数の代表値（バッチ法による測定値） |
| 表-3.8 | 分配係数値と $C_a + M_g$ 濃度との相関関係 |
| 表-3.9 | 分配係数値と pH 値との相関関係 |
| 表-3.10 | 飽和土壌カラムによって測定した核種の分配係数値および実験条件一覧 |
| 表-3.11 | 不飽和土壌カラムによって測定した ^{90}Sr の分配係数値および実験条件一覧 |
| 表-3.12 | 用いたイオン交換材の性質一覧 |
| 表-3.13 | カラム実験条件一覧 |
| 表-3.14 | カラム実験の実験条件一覧（試料土壌：M） |
| 表-3.15 | 実験に用いた水道水の水質 |
| 表-3.16 | 放射性核種の化学形態および濃度 |
| 表-3.17 | 原研砂の分配係数値と測定条件 |
| 表-3.18 | 模擬廃液の給水区分とその性質 |
| 表-3.19 | 実験の時間経過 |
| 表-3.20 | 飽和度測定用電極とその取付位置 |
| 表-3.21 | 分配係数値とその測定条件 |

| | |
|---------|--|
| 表- 4.1 | 想定した放射性廃棄物の地中処分法 |
| 表- 4.2 | 合計出力 200 万 kWe の BWR 発電炉から発生する放射性廃棄物の核種別発生量 |
| 表- 4.3 | 処分した廃棄物から 1 年当り地中へ漏出する放射性核種量 |
| 表- 4.4 | 海へ移行する放射性核種量 |
| 表- 4.5 | 放射性核種の分配係数値および農産物・海産物による濃縮係数 |
| 表- 4.6 | 飲料水、海産物および農産物中の放射性核種濃度 |
| 表- 4.7 | 廃棄物を地中処分することによって生じる内部被曝線量の増分 |
| 表- 4.8 | 地中処分の立地条件 |
| 表- 4.9 | 想定した地中処分場の基準位置 |
| 表- 4.10 | 基準位置における各環境因子の感度 |
| 表- 4.11 | 感度・感度係数の符号および各環境因子と被曝線量との相関 |
| 表- 4.12 | 環境因子と感度係数との相関 |
| 表- 4.13 | 地理的条件を変化させた場合の経路別内部被曝線量 |
| 表- 4.14 | 地中処分場として望ましい立地条件 |
| 表- 4.15 | 我国の放射性廃棄物保管場周辺における食物の摂取 |
| 表- 4.16 | 我国の放射性廃棄物保管場の特性 |
| 表- 4.17 | 諸外国の放射性廃棄物地中処分場周辺における食物の摂取 |
| 表- 4.18 | 諸外国の放射性廃棄物地中処分場の特性 |
| 表- 4.19 | 我国の放射性廃棄物保管場の安全性 |
| 表- 4.20 | 諸外国の放射性廃棄物地中処分場の安全性 |
| 表- 4.21 | 格子点(17,6)周辺での相対的安全性(立地条件)の比較 |
| 表- 4.22 | 立地要件の経時変化 |
| 表- 4.23 | 環境因子が種々の値をとる場合の立地要件の変化 |
| 表- 5.1 | 原子力施設の周辺で同定された決定経路、決定核種、決定集団 |
| 表- 5.2 | モニタリング項目の性質一覧 |
| 表- 5.3 | モニタリング項目の被曝線量に対する感度および感度係数 |
| 表- 5.4 | ^{90}Y の地下水中濃度分布から推定した L と $2y_0$ |
| 表- 5.5 | 予知モニタリング系のモニタリング位置とその守備範囲 |

図 の リ ス ト

- 図-1.1 原子炉事故と人工災害・自然災害との比較
- 図-1.2 各種発電方式による職業人リスクの比較
- 図-1.3 放射性廃棄物対策プロジェクトの目標（参考）

- 図-2.1 イオン状および非イオン状 ^{90}Y の砂カラム流出曲線
- 図-2.2 ^{65}Zn の土壌カラム流出曲線
- 図-2.3 Sr の電位 - pH 平衡図
- 図-2.4 Frontal Analysis の適用手順

- 図-3.1 飽和指数値 I_t と地下水中 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度の変化
- 図-3.2 飽和指数の増分 ΔI_t と地下水中 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度
- 図-3.3 ^{45}Ca の模擬セメント固化体からの浸出
- 図-3.4 セメント固化体からの放射性核種の浸出
- 図-3.5 (A) ^{90}Sr 分配係数値の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度との相関（試料土壌：A）
(B) ^{90}Sr 分配係数値の pH との相関（試料土壌：A）
- 図-3.6 (A) ^{90}Sr 分配係数値と $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度との相関（試料土壌：K）
(B) ^{90}Sr 分配係数値と pH との相関（試料土壌：K）
- 図-3.7 ^{90}Sr 分配係数値と土壌の陽イオン交換容量との相関
- 図-3.8 (A) ^{90}Y の分配係数値の pH との相関
(B) ^{90}Y の分配係数値の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度との相関
- 図-3.9 限界濾過試験による ^{90}Y の粒度分布
- 図-3.10 pH による非イオン状 ^{90}Y 存在分率の変化
- 図-3.11 ^{90}Y の分配係数値と pH との相関
- 図-3.12 ^{90}Y の樹脂カラム流出曲線（低 pH 領域）
- 図-3.13 ^{90}Y の樹脂カラム流出曲線（高 pH 領域）
- 図-3.14 ^{90}Y の土壌カラム流出曲線
- 図-3.15 HTO および ^{90}Y の土壌カラム初期流出の比較
- 図-3.16 ^{90}Sr および ^{90}Y の土壌カラム流出曲線の比較
- 図-3.17 土壌に収着されない ^{90}Y の存在分率の pH との相関
- 図-3.18 (A) ^{45}Ca の土壌カラム流出曲線（ $I_t < 0$ の場合）
(B) ^{45}Ca の土壌カラム流出曲線（ $I_t \cong 0$ の場合）
(C) ^{45}Ca の土壌カラム流出曲線（ $I_t > 0$ の場合）
- 図-3.19 ^{65}Zn の土壌カラム流出曲線
- 図-3.20 ^{56}Mn の土壌カラム流出曲線

- 図-3.21 ^{60}Co の土壌カラム流出曲線
- 図-3.22 ^{89}Sr の土壌カラム流出曲線
- 図-3.23 ^{137}Cs の土壌カラム流出曲線
- 図-3.24 ^{137}Cs の土壌カラム流出曲線
- 図-3.25 ^{110m}Ag の流出曲線
- 図-3.26 ^{59}Fe の流出曲線
- 図-3.27 ^{89}Sr , ^{60}Co , ^{137}Cs の土壌カラム流出曲線
- 図-3.28 ^{89}Sr , ^{60}Co , ^{137}Cs の交換平衡曲線
- 図-3.29 理論流出曲線と実測流出曲線との比較
- 図-3.30 帯水層模型実験装置
- 図-3.31 流速測定用電極および温度測定用電極の配置
- 図-3.32 地層通過水の水質変化
- 図-3.33 数値的に予測した地層間隙水の流速分布
- 図-3.34 三重水素水 (HTO) の注入位置
- 図-3.35 三重水素水の地層間隙水中濃度分布 (注入点: D)
- 図-3.36 三重水素水の地層間隙水中濃度分布 (注入点: A)
- 図-3.37 地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度分布
- 図-3.38 地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度の鉛直断面分布
- 図-3.39 地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度の経時変化
- 図-3.40 ^{90}Sr の地層 (土壌) 中濃度分布
- 図-3.41 土壌中 ^{90}Sr 濃度の鉛直断面分布
- 図-3.42 ^{90}Sr のセメント固化体からの浸出速度の比較
- 図-3.43 ^{90}Sr の地層内濃度分布を推定するためのフロー・チャート
- 図-3.44 セメント固化体表面での間隙水中 ^{90}Sr の濃度分布
- 図-3.45 数値解析による地層間隙水中 ^{90}Sr 濃度分布
- 図-3.46 実測 ^{90}Sr 濃度分布と数値解による予測濃度分布の比較 (平衡状態)
- 図-3.47 実測 ^{90}Sr 濃度分布と井上の理論による予測濃度分布の比較 (平衡状態)
- 図-3.48 通気層模型実験装置 (廃液浸透実験)
- 図-3.49 模擬廃液の供給強度分布
- 図-3.50 飽和度測定装置の検定曲線 (Station A)
- 図-3.51 $D(\theta)$, $\lambda(\theta)$ の測定装置
- 図-3.52 地層流出水の水質変化
- 図-3.53 地層の飽和度の経時変化 (Station A)
- 図-3.54 模擬廃液の給水率と地層の平衡飽和度
- 図-3.55 地層の飽和度の深度分布
- 図-3.56 地層流出水中の三重水素水 (HTO) 濃度の経時変化
- 図-3.57 土壌水分の分布曲線

- 図-3.58 土壌水分拡散係数
- 図-3.59 毛管ポテンシャルと土壌水分量との相関
- 図-3.60 地層流出水中の ^{90}Sr 濃度の経時変化
- 図-3.61 ^{90}Sr の地層内縦断面分布
- 図-3.62 ^{90}Sr , ^{60}Co の地層内濃度分布, 実測値と予測値(井上の拡張理論)の比較
- 図-3.63 ^{90}Sr 濃度を決定するためのフロー・チャート
- 図-3.64 ^{90}Sr の地層内分布, 予測分布(実線)と実測分布(破線)との比較
- 図-3.65 ^{90}Sr の地層内濃度分布の比較
- 図-3.66 通気層模型実験装置(固化体降雨実験)
- 図-3.67 地層流出水中 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度の経時変化
- 図-3.68 地層流出水中 pH の経時変化
- 図-3.69 地層流出水中 HTO 濃度の経時変化
- 図-3.70 ^{90}Sr の地層内縦断面分布
- 図-3.71 ^{90}Sr の地層内分布, 予測分布(実線)と実測分布(破線)との比較
- 図-3.72 各水質の流出パターンの比較
- 図-3.73 ^{90}Sr の地層内予測濃度分布の比較

- 図-4.1 想定した放射性核種の環境中での移行経路
- 図-4.2 感度値の処分場から灌漑用水採取井戸までの距離 L_3 による変化
- 図-4.3 放射性廃棄物地中処分場の安全性を評価するための評価図表
- 図-4.4 被曝線量の厳密計算値と近似推定値との関係
- 図-4.5 被曝線量の近似推定によって生じる誤差
- 図-4.6 調査対象に選定した世界の廃棄物関連施設
- 図-4.7 土壌の種類と透水係数との相関
- 図-4.8 土壌の種類と地層の空隙率との相関
- 図-4.9 廃棄処分場を立地させるために想定した原子力施設敷地
- 図-4.10 原子力施設敷地内の地下水位の分布
- 図-4.11 原子力施設敷地内の地下水等水位線図
- 図-4.12 原子力施設敷地内の地下水の流向・流速分布
- 図-4.13 原子力施設敷地内の環境因子値の分布
- 図-4.14 処分場の最適位置を選定するための計算フロー・チャート
- 図-4.15 処分場最適立地位置の探索手順
- 図-4.16 線量極小格子点(17,6)周辺での ^{90}Sr の移動経路
- 図-4.17 立地要件を設定するために用いる計算のフロー・チャート
- 図-4.18 処分場周辺地下水中の ^{90}Sr 濃度の分布(10年後)
- 図-4.19 地下水 ^{90}Sr 濃度の経時変化
- 図-4.20 処分場周辺地下水中の ^{90}Sr 濃度の推定定常分布

- 図-4.21 標準拡散係数 D_m が10倍の場合の ^{90}Sr 濃度の定常分布
- 図-4.22 標準拡散係数 D_m が1/10倍の場合の ^{90}Sr 濃度の定常分布

- 図-5.1 一般廃棄物埋立処分場周辺の環境調査で採用された試料採取位置の配置と地下水中塩素イオン濃度の分布
- 図-5.2 Chalk River 原子力研究所で核種の地中移動を把握するために採用されたモニタリング網
- 図-5.3 Morehead (Maxey Flats) 廃棄物埋設処分場周辺の環境調査で採用された試料採取位置の配置
- 図-5.4 モニタリング項目と誤差の伝播
- 図-5.5 放射性核種 (^{90}Sr) の土壌中濃度 q と地下水中濃度 C との相関
- 図-5.6 地下水中の ^{90}Sr , ^{90}Y 濃度の変化 ($k_{dsr} = 10 \text{ ml/g}$ の場合)
- 図-5.7 地下水中の ^{90}Sr , ^{90}Y 濃度の変化 (流下距離が 10 m の場合)
- 図-5.8 ^{90}Y が先行指標として有効な範囲
- 図-5.9 地中処分場周辺のモニタリング計画の概念
- 図-5.10 予知モニタリング系のモニタリング位置を決定する手法の概念図
- 図-5.11 ^{90}Y の地下水中等濃度線
- 図-5.12 $T_Y(L) + t_Y(2y_0)$ と y_0 との相関
- 図-5.13 $T_Y(L)$ と L との相関
- 図-5.14 $T_Y(L)$ と T_s との相関
- 図-5.15 予知モニタリング系, モニタリング位置の配置例

- 図-6.1 本論文の構成

記 号 表

| | |
|-----------------------|---|
| A | セメント固化体の有効表面積 |
| a | ^{90}Y の地下水中濃度 |
| a, b | 各々, A, B 両イオンのイオン価数 |
| C | 液相内での放射性核種濃度 (核種を指定する場合は添字をつける) |
| C_0 | 溶液中の全陽イオン濃度または当該物質の初期濃度 |
| $C.E.C$ | 土壌の陽イオン交換容量 (Cation Exchange Capacity) |
| CF_{sf} | 海 (水) 産物による放射性核種の濃縮係数 |
| CF_p | 農産物による放射性核種の濃縮係数 |
| D | 公衆の構成員に対する線量限度 |
| D | 放射性核種のセメント固化体内での拡散係数 |
| $D(\theta)$ | 土壌水分拡散係数 (moisture diffusivity) |
| D_s | 内部被曝線量の総和 |
| D_{s0} | 基準位置での内部被曝線量 ($D_s = D_{s0} + \Delta D_s$) |
| $D_{s,1}$ | 飲料水を飲用することによってうける人の内部被曝線量 |
| $D_{s,2}$ | 海 (水) 産物を摂取することによってうける人の内部被曝線量 |
| $D_{s,3}$ | 農産物を摂取することによってうける人の内部被曝線量 |
| $D_{s,ac}(x)$ | 基準位置から離れた位置の感度を用いて推定した内部被曝線量の近似計算値 |
| $D_{s,ac}(x_0)$ | 基準位置の感度を用いて推定した内部被曝線量の近似計算値 |
| $D_{s,ac}$ | 内部被曝線量の厳密計算値 |
| D_d | 分子拡散係数 |
| D_r | 海水の拡散係数 |
| D_m | 標準拡散係数 |
| D_x, D_y, D_z | 各々の x, y, z 方向の水または放射性核種の濃度勾配を起動力とする拡散係数 |
| d | 放射性核種の帯水層中での平均混合深さ, または帯水層の厚さ |
| f | 地層の空隙率 |
| H | 通気層の厚さ (地表面と地下水面との間の距離) |
| h | セメント固化体の高さ |
| $\Delta h / \Delta l$ | 動水勾配 |
| I_p | 農産物の1日当り摂取量 |
| I_{sf} | 海 (水) 産物の1日当り摂取量 |
| I_t | 水温が t °C の場合の飽和指数 |
| K | 地下水層 (帯水層) の透水係数 |
| K_0 | 変型第2種0次ベッセル関数 |
| K_A^B | イオン A とイオン B との間のイオン交換反応について定まる交換平衡定数 (質量作用 |

| | |
|--------------------|---|
| | 定数) |
| K_f | 帯水層の時間変換係数 (K_f 値) |
| $K_{f,u}$ | 通気層の時間変換係数 (K_f 値) |
| k | 地層の透水係数 |
| k | 放射性核種のセメント固化体からの浸出速度係数 |
| kd_u | 不飽和状態 (通気層) での (平衡) 分配係数値 (数値を持たない場合は分配係数と呼ぶ) |
| kd_s, kd | 飽和状態 (帯水層) での (平衡) 分配係数値 (数値を持たない場合は分配係数と呼ぶ) |
| kd_A | イオン A の液相と固相との間の (平衡) 分配係数 (指定しない場合は帯水層での値) |
| k_{kin} | 反応速度定数 |
| L | 放射性核種の地中での移動距離または移動経路長さ |
| L | 放射物質の地中への漏出位置からモニタリング・ラインまでの距離 |
| L_1 | 地中処分場から飲料用地下水採取位置までの放射性核種の移動経路長さ |
| L_2 | 地中処分場から公共水域 (海) までの放射性核種の移動経路長さ |
| L_3 | 地中処分場から灌漑用地下水採取位置までの放射性核種の移動経路長さ |
| l | イオン交換塔の体積 |
| M | 放射性核種の海への移行量 |
| M_o | 放射性核種の処分量 |
| M_o | セメント固体内への放射性核種の封入量 |
| M_f | セメント固化体内でセメント水和物を共成している放射性核種量 |
| M_m | セメント固化体内でセメント水和物を共成している放射性核種量 |
| M_t | 時間 t の間にセメント固化体から浸出した放射性核種の積算量 |
| MPC_w | 公衆の構成員に対する放射性核種の水中最大許容濃度 |
| N | セメント固化体からの放射性核種の浸出フラックス |
| P | 放射性核種の海水中での平均混合深さ |
| P_p, P_d, P_{sf} | 放射性核種を含む農産物, 飲料水, 海 (水) 産物を摂取する確率 |
| pH_s | $I_t = 0$ の場合に対応する水素イオン濃度 (pH) |
| Q | 通気層中を移動する単位断面積当りの土壌水分フラックス |
| q | 固相内での放射性核種濃度 (核種を指定する場合は添字をつける) |
| q_0 | 放射性核種の地中への移行速度 (フラックス) |
| q_0 | 土壌中放射性核種の平衡濃度 ($q_0 = kd \cdot C_o$) |
| q_1 | 放射性核種の帯水層への移行速度 (フラックス) |
| q_2 | 放射性核種の海への移行速度 (フラックス) |
| q_∞ | 土壌の陽イオン交換容量 |
| q_p | 農産物中の放射性核種濃度 |
| q_{sf} | 海 (水) 産物中の放射性核種濃度 |
| R | セメント固化体の半径または気体定数 |

| | |
|------------------------|---|
| r | 年間降水量 |
| r | 核種の海への移行位置からの距離, 海(水)産物の採取位置 |
| S | 海水中の放射性核種濃度 |
| S | 地層を構成する土壌間隙の水による飽和度 |
| S_A^B | イオンAとイオンBとの間の分離定数 |
| T | 絶対温度 |
| T | 地下水の移動を測る時間スケール |
| T_m | 動態モニタリング系を配備するのに要する時間 |
| T_s | モニタリングの時間間隔 |
| $T(L)$ | モニタリング位置で ^{90}Y を検知後 ^{90}Sr を検知するまでに要する時間の最小値 |
| $T_{s,r}(L)$ | ^{90}Sr が L を移動するのに要する時間 |
| $T_Y(L)$ | ^{90}Y が L を移動するのに要する時間 |
| t | 放射性核種の移動を測る時間スケールまたは単なる時間 |
| $t_{1/2}$ | 放射性核種の半減期 |
| $t_Y(2y_0)$ | ^{90}Y の L 上での分布幅が0から $2y_0$ になるまでに要する時間 |
| V | カラム流入液の積算体積 |
| V | 液相の体積 |
| V_s | 液相中の核種濃度が不連続に変化する場合の容液通水量 |
| v | イオンの部分分子容 |
| v | 帯水層中での地下水の流速 |
| v_a | 通気層中での雨水の浸透速度 |
| v_x, v_y, v_z | 各々, x, y, z 方向の地下水流速 |
| W | 固相の重量 |
| x | 環境因子の一般的表現(状態変数) |
| x_0 | 基準位置における環境因子の値 |
| Y_0 | y_0 の平衡値(最大値) |
| y_0 | 1つのモニタリング位置の検索範囲の $1/2$ |
| β_n | $J(\beta) = 0$ の根 |
| $\gamma, \bar{\gamma}$ | イオンの活動度係数 |
| η | 速度係数 |
| θ | 海岸の開度, 放射性核種の拡散角度 |
| θ | 土壌水分量(土壌の真体積単位当りの土壌水分量を容積比で表わす) |
| θ_0 | 初期土壌水分量 |
| $\lambda(\theta)$ | 毛管伝導度または不飽和透水係数 |
| λ | 放射性核種の崩壊定数 |
| ρ | 地層を構成する土壌の真密度 |
| Φ | 土壌水の移動の原動力となる総ポテンシャル |

| | |
|-----------|---------------|
| ϕ | 土壌水分の重力ポテンシャル |
| ψ | 土壌水分の毛管ポテンシャル |
| φ | 速度ポテンシャル |
| ω | 緩和係数 |

第1章 緒 論

1.1 はじめに

国民経済を維持し発展させるためには、長期的な視野に立った総合的なエネルギー政策が不可欠である。このエネルギーは、(1) 長期間安定して(供給の安定性)、(2) 経済的に(経済性)、かつ(3) 国民の生活環境を著しく損うことなく(非公害性)、供給されねばならない。1973年に生じたいわゆるオイル・ショック、それに伴って生じた経済成長の減速等は、世界的にエネルギー政策を再検討する必要をせまっているといえる。

表-1.1に世界のエネルギー資源埋蔵量を示す。⁽¹⁾ 石油、石炭、オイル・シェール、タールサンド

表-1.1 世界のエネルギー資源埋蔵量

(酒井(1)より引用)

| 種 別 | 単 位 | 埋 蔵 量 | | 主要国(地域) |
|---------|-------------------------|----------------------------|-----------------------------------|---|
| | | 予 想 | 確 認 | |
| 石 炭 | 億 t | 67,115 | | ソ連, アメリカ, 中国, 西ドイツ, カナダ |
| 亜 炭 | 億 t | 20,413 | | アメリカ, ソ連, 西独, オーストラリア |
| 石 油 | 億 kl | 3,463 億t | | アメリカ, ソ連, アルジェリア, リビア, ナイジェリア, 中東, インドネシア |
| 天 然 ガ ス | 兆 m ³ | 2,330 億t | 49(CE.6,823億t) 905(CE.1,484億t) | 北アメリカ, ソ連, 中東, オランダ, アルジェリア, ナイジェリア |
| ウ ラ ン | UO 換算 1000 ショートトン | 陸上 40~2,500 万t 海中 50 億t | 10ドル以下 839.3 10ドル~15ドル | カナダ, 南アフリカ共和国, アメリカ |
| 水 力 | 百万 kW | 1,271 | | |
| オイルシェール | 億 t | 3,200 | | アメリカ, ブラジル |
| タールサンド | 億 kl | 3,800 | | カナダ, ベネズエラ, アメリカ, コロンビア |

のような化石燃料の確認埋蔵量は石油換算約1,000億リットルの桁数にある。このうち、オイル・シェール、タールサンド等からの石油の採取は、石油価格の高騰によって最近経済的に妥当なエネルギー源になりつつあるものの、それが実用されるまでにはなお時間が必要と思われる。原油の究極可採埋蔵量は約1兆7,000億バレルと推定されており、原油がエネルギー供給源として占める位置は今世紀中は尚大きいといえる。しかしながら、原油の生産量は1980年中頃から減少傾向に転ずると考えられている。⁽²⁾ 一方、ウラン資源については確認埋蔵量は約160万tonであるが、今後の探査によって増加する可能性が大きい。さらに海水中のウランの採取、高速増殖炉の開発等に成功すれば、今後世界中で必要とするエネルギーの数百年分を賄うにたるエネルギー源になると期待されている。原子力燃料は、石油に比べると輸送・備蓄が容易であることから、我国でも準国産エネルギーと考えられており、現在すでにウラン精鉱で約14万ton、1985年頃までの需要に相当する量が確保されている。⁽³⁾

原子力発電の経済性に関する議論が、1962年に通産省・産業構造調査会が発電単価を軽水炉で

2.90 円/kWh、重油火力で 2.83 円/kWh（いずれも 1967 年価格）として推定して以来活発に行なわれている。⁽⁴⁾ 発電単価は 1975 年現在では表-1.2 のように推定されている。⁽⁴⁾ 表-1.2 に示した発電単価の推定には、一応公害対策費が見込んである。しかしながら、原子力発電の経済性を総合的に判断する場合に欠くことができない放射性廃棄物の処理・処分に要する費用は算定されていないことから、必ずしも軽水炉発電が火力発電に比べ 2 円/kWh も経済的であるとは断定できない。原子力発電の発電単価を押し上げる要因は、建設期間の長期化、ウラン資源の価格上昇、電力需要の不振等多くある。さらに発電所の立地難も併せて発電単価は上がる一方である。実際、関西電力が昭和 51 年に電源開発調整審議会にかけるとする予定の新発電所（120 万 KWe 級）の発電単価は 9 円/kWh 前後、東京電力が 52 年 8 月から建設予定の柏崎 1 号炉（110 万 KWe）では 13 円/kWh に達するものと予想されている。⁽⁵⁾ さらに、使用済燃料の再処理等に要する費用を発電単価に反映させれば、必ずしも原子力発電の経済的優位は保証されないものと思われる。

表-1.2 原子力、火力の発電コストの比較

(山田(4)より引用)

| | 原火別 | 固定費 | 燃料費 | 合計 |
|--------|-----|------|------|------|
| 石油値上げ後 | 原子力 | 6.60 | 1.39 | 7.99 |
| | 火力 | 3.10 | 6.88 | 9.98 |
| 値上げ前 | 原子力 | 3.30 | 0.70 | 4.00 |
| | 火力 | 2.20 | 1.63 | 3.83 |

(単位は円/kWh)

望ましいエネルギー源の満たすべき第 3 の条件に適合する、すなわち国民の生活環境を著しく損うことなく安全にエネルギーを供給する手段として有効なエネルギー源あるいはその組み合わせを選定する必要がある。図-1.1 は⁽⁶⁾ 原子炉事故の発生確率とその規模を種々の人工災害、自然災害と比較したものである。エネルギー源の安全性を正しく評価するためには、社会や個人が実際に直面している他の要因によるリスクと、当該エネルギー源を採用することによって生じるリスクとを比較する必要がある。図-1.1 は原子炉事故によってもたらされるリスクが、自然災害や人工災害のそれに比べて充分に小さいことを示

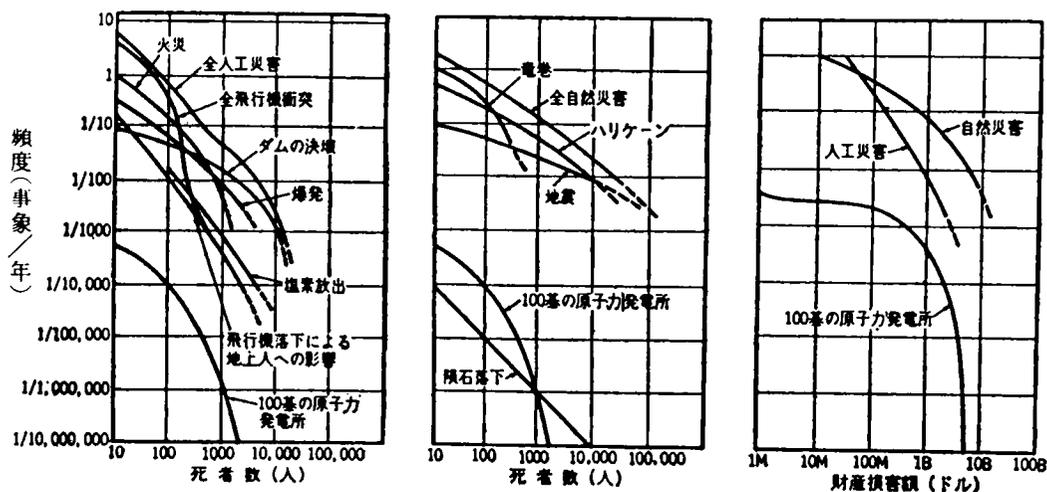


図-1.1 原子炉事故と人工災害・自然災害との比較

(文献(6)より引用)

している。勿論、リスクが小さいということはそれだけでは当該エネルギー源を採用することの根拠とはなり得ない。原子力を本格的に採用できるようになるためには、他のエネルギー源によるリスクとの関係をも考慮して、「How safe is safe enough?」という疑問に対し、社会的合意を得る必要がある。都甲は、⁽⁷⁾ 容認できるリスク・レベルは、それに伴って生じる利益と関連して大きく変化するものの、ふつうの人がほとんど関心を払わなくなるリスク・レベルの上限値が、個人の年間死亡率では 10^{-6} 程度であるとの調査結果を紹介している。上記の疑問は、逆にいうと社会全体としてどの程度のリスクであれば許容するかという疑問に等価である。図-1.1より、仮に1,000人の死者がでるような事故の発生頻度が1年当り 10^{-6} 回(百万年に1回)であるリスクを許容することにすれば、エネルギー源として原子力が採用されうることになる。

同じような安全性(危険性)の比較を、種々のエネルギー源についても行なう必要がある。図-1.2⁽⁷⁾は、各種の発電方式によって職業人が受けるリスクを比較したものである。同図より、原子力発電は他の発電方式に比べてもリスクが小さいことが伺える。一方、環境を汚染させる度合についても原子力発電所は火力発電所に比べると小さいといわれる。⁽⁸⁾しかしながら、なお原子力発電に対する public acceptance が得られないのは、例えば図-1.1や図-1.2に示すような安全性に関する資料の信頼性に問題があることや、リスクを受ける集団と利益を受ける集団とが一致しないこと、また原子力発電技術が電気エネルギーをとり出す発電所の他に、核燃料、使用済み燃料の再処理、廃棄物の処理・処分、廃炉の処分等を含めたトータル・システムとして評価されていないこと等に起因すると思われる。実際、核燃料の採取に始まる核燃料サイクル*は、特に放射性廃棄物の処理・処分の段階で閉じていないのが現状である。核燃料サイクルが閉じるようになるまでは他のエネルギー源に依存し、少なくとも原子力開発計画を遅らせるべきだとする主張^{(9)~(11)}には説得力がある。

結局、現時点では原子力発電は必ずしも、例えば火力発電に比べて、経済的であると断定できないが、化石燃料の枯渇等を考慮すれば長期的に安定したエネルギーを得るためには、原子力にたよらざるを得ないということになる。原子力を次代のエネルギー源とすることに対する国民の合意を得るためには、放射性廃棄物の処理・処分に関する研究開発を嚴重に実施して、核燃料サイクルを閉じる

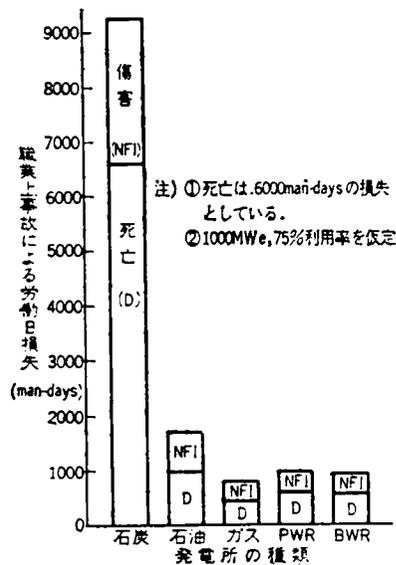


図-1.2 各種発電方式による職業人リスクの比較 (都甲(7)より引用)

*核燃料の採鉱、採鉱、製錬、濃縮、加工、利用、再処理、燃料サイクル、廃棄物の処理・処分および、これらをつなぐ輸送等、核エネルギーの利用に関する核燃料・エネルギー・情報・技術等の流れを核燃料サイクルという。採鉱から利用までを特にアップ・ストリーム(フロント・エンド)、再処理から処理・処分までをダウン・ストリーム(バック・エンド)と呼ぶことがある。

ことが不可欠な要件となる。

我国の原子力開発計画は、数回の再検討を経て今日に至っている。原子力発電長期計画の推移を整理して表-1.3に示す。現在の原子力発電長期計画は昭和60年度末に4,900万KWを目標にして進められつつある。⁽¹⁵⁾ 我国の現在の原子力発電の規模は、稼働中のもの8基389万KW、建設中のもの15基、1,268万KWである。この他に、現在すでに電源開発調整審議会の認可済みの原子力発電所がすべて順調に建設されたとしても昭和57年度末には、約2,000万KWにしか達しないとみこまれている。⁽²⁾ それ故、60年度末に4,900万KWと改められた計画でさえも、すでに非現実視するむきが強い。

表-1.3 原子力発電長期計画の推移

| 策定年次 | 長期計画名 | 年度末開発規模の見通し(10 ⁴ kW) | | | | | |
|--------|-------------------|---------------------------------|---------|-------------|--------|--------|--------|
| | | 50年 | 55年 | 60年 | 65年 | 70年 | 75年 |
| 32年12月 | 原子力委員会(第1次) | 700 | | | | | |
| 36年2月 | 原子力委員会(第2次) | | 500~800 | | | | |
| 41年3月 | 原子力産業会議(吉村部会) | 484 | | 4,276 | | | 16,445 |
| 42年2月 | 通産省エネルギー調査会(第1次) | 600 | | 3,000~4,000 | | | |
| 42年4月 | 原子力委員会(第3次) | 600 | | 3,000~4,000 | | | |
| 45年7月 | 通産省エネルギー調査会(第2次) | 866 | | 6,000 | | | |
| 46年3月 | 原子力産業会議(2000年構想) | | 2,700 | | 11,000 | | 22,000 |
| 47年6月 | 原子力委員会(第4次) | | 3,200 | 6,000 | 10,000 | | |
| 50年7月 | 科学技術会議(エネルギー技術報告) | | | 3,000~5,000 | | | |
| 50年8月 | 通産省エネルギー調査会(第3次) | | 1,660 | 4,900 | | | |
| 50年12月 | 原子力産業会議(石原委員会) | | | | 9,000 | | |
| 51年5月 | 核燃料研究委・総合部会 | | | | | 12,900 | |

文献(12)~(14)より作成

表-1.4⁽¹⁶⁾は上記の「努力目標値」が達成された場合の、電源構成を示したものである。

表-1.3をみると明らかのように、ここ数年原子力発電規模の将来計画はその伸び率を鈍化させてきてはいるが、発電容量は着実に増加している(昭和49年3月現在で世界第4位)。発電容量の増加は、放射性廃棄物の発生・蓄積量が増加することを意味する。原子力発電所で発生する放射性廃棄物は、使用済樹脂、フィルター・スラッジ、濃縮器廃液、雑固体等の固体および液体廃棄物と気体廃棄物である。これらの廃棄物の内、固体廃棄物および廃液の固化体は、現在はその全量が発電所の敷地内建屋に保管されている。発電所によっては、既設の廃棄物建屋が廃棄物でいっぱいになり、毎年新しい建屋を建造しているところもある。表-1.5は昭和60年度末に発電規模4,900万KWという目標が達成された場合の、放射性廃棄物の発生量を示している。表-1.5中原子力発電所以外の原子力施

表-1.4 電源別電力供給計画
年度末電源構成

(単位・万kW)

| 区 分 | 項 目 | 49年度(実績) | | 55年 度 | | 60年 度 | |
|-----|-----|----------|--------|--------|--------|--------|--------|
| | | | 構成率(%) | | 構成率(%) | | 構成率(%) |
| 水 | 力 | 2,250 | 24.3 | 2,920 | 21.4 | 4,130 | 21.6 |
| 火 | 力 | 6,610 | 71.5 | 9,080 | 66.5 | 10,090 | 52.8 |
| 原 | 子 | 390 | 4.2 | 1,660 | 12.1 | 4,900 | 25.6 |
| 合 | 計 | 9,250 | 100 | 13,660 | 100 | 19,120 | 100 |

(注) 自家用発電施設を除く。

電源別発電電力量

(単位・億kWh)

| 原動力別 | 項 目 | 49年度(推定実績) | | 55年 度 | | 60年 度 | |
|------|-----|------------|--------|-------|--------|-------|--------|
| | | 発電電力量 | 構成率(%) | 発電電力量 | 構成率(%) | 発電電力量 | 構成率(%) |
| 水 | 力 | 791 | 19.7 | 855 | 14.5 | 1,003 | 12.4 |
| 火 | 力 | 3,023 | 75.1 | 4,072 | 69.1 | 4,297 | 53.1 |
| 原 | 子 | 198 | 4.9 | 954 | 16.2 | 2,783 | 34.4 |
| 自 | 家 | 11 | 0.3 | 9 | 0.2 | 9 | 0.1 |
| 合 | 計 | 4,023 | 100 | 5,890 | 100 | 8,092 | 100 |

文献(16)より

設からの廃棄物発生量については、放射性固体廃棄物処理・処分検討会⁽¹⁷⁾による推定値を用い、原子力発電所については廃棄物の発生量が発電規模に比例するとみなして、同検討会の推定値を補正した。この莫大な量の放射性廃棄物が、すでに述べたように、原子力発電システムを閉じるための研究開発を強力に展開する必要があることを啓示している。原子力が次代をになうエネルギー源となりうるか否かはこの研究開発の成否にかかっているといえる。

1.2 諸外国における放射性廃棄物処分の現状

1.2.1 廃棄物の処分方法

現在、世界で実用されている放射性廃棄物の処分方法は、地中処分法と海洋処分法である。現在までに処分された廃棄物の放射エネルギーと比較すると、地中処分法によって処分された量は全体のほぼ99%を占めている。⁽¹⁸⁾この他、近い将来に実用される可能性がある処分法としては、廃棄物中に含まれる放射性核種を安定元素に変えたり、より半減期の短い放射性核種に変えてしまう原子力による消滅処分とがある。

(1) 地中処分

地中処分の対象となる放射性廃棄物は固体(固化体を含む)、液体、気体である。ただし、気体廃棄物の地中処分は、実用化に向けての研究が実地層を用いて実施されている段階である。⁽¹⁹⁾放射性廃棄物を地中に処分すると、放射性物質が地下水中に溶け出して非常に危険なように考えられる。しかし、実際は、土の持つ大きな交換容量により土に吸着されてあまり地中を移動しない。例えば、カ

表-1.5 原子力施設からの放射性廃棄物の発生量

(a) 放射能発生量 (C·)

| 年 度 | 5 0 | | 5 5 | | 6 0 | |
|-------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| | 年発生量 | 累 積 量 | 年発生量 | 累 積 量 | 年発生量 | 累 積 量 |
| ウラン製錬・加工 | 3.7 | 1.2×10^8 | 7.5 | 4.2×10^8 | 15.9 | 1.0×10^9 |
| プルトニウム加工 | - | 0 | - | 0 | - | 10 |
| 再 処 理 工 場 | 1.3×10^8 | 2.6×10^8 | 3.6×10^8 | 1.3×10^9 | 3.6×10^8 | 3.1×10^9 |
| 大型 研究施設 | 4.4×10^4 | 1.6×10^5 | 5.6×10^4 | 4.1×10^5 | 7.2×10^4 | 7.4×10^5 |
| R・I 使用事業所 | 3.1×10^2 | 1.5×10^3 | 4.0×10^2 | 3.3×10^3 | 5.2×10^2 | 5.6×10^3 |
| 原 子 力 発 電 所 | 3.4×10^3 | 8.1×10^3 | 1.5×10^4 | 5.9×10^4 | 3.4×10^4 | 1.9×10^5 |
| 計 | 1.3×10^8 | 2.6×10^8 | 3.6×10^8 | 1.3×10^9 | 3.6×10^8 | 3.1×10^9 |

累積量は昭和44年以前の発生量を含まない。

(b) 体積発生量 (m³)

| 年 度 | 5 0 | | 5 5 | | 6 0 | |
|-------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| | 年発生量 | 累 積 量 | 年発生量 | 累 積 量 | 年発生量 | 累 積 量 |
| ウラン製錬・加工 | 2.1×10^3 | 6.5×10^3 | 4.3×10^3 | 2.4×10^4 | 8.9×10^3 | 5.8×10^4 |
| プルトニウム加工 | 2.3×10^3 | 5.0×10^3 | 2.9×10^3 | 1.8×10^4 | 3.5×10^3 | 3.4×10^4 |
| 再 処 理 工 場 | 1.7×10^3 | 3.4×10^3 | 4.1×10^3 | 1.4×10^4 | 4.1×10^3 | 3.5×10^4 |
| 大型 研究施設 | 2.4×10^3 | 1.1×10^4 | 3.1×10^3 | 2.5×10^4 | 3.9×10^3 | 4.2×10^4 |
| R・I 使用事業所 | 5.6×10^2 | 2.7×10^3 | 7.9×10^2 | 6.3×10^3 | 1.0×10^3 | 1.1×10^4 |
| 原 子 力 発 電 所 | 5.2×10^3 | 1.3×10^4 | 1.6×10^4 | 7.2×10^4 | 3.6×10^4 | 2.0×10^5 |
| 計 | 1.4×10^4 | 3.7×10^4 | 2.9×10^4 | 1.5×10^5 | 5.3×10^4 | 3.5×10^5 |

累積量は昭和44年以前の発生量を含まない。

ナダの Chalk River 研究所では1972年までに約524万Ciの放射性廃棄物を地中に処分・保管した(内、直接地中に処分したのは32,000Ci)が、1972年までに同処分場から環境中へ漏出したのは約13Ci、1972年1年間では約0.88Ciであると見込まれている。⁽²⁰⁾ 1952年のNRX炉の事故によって生じた約1,000Ciの⁹⁰Srを含む廃液約4,600 m³が地中に浸透処理されたが、2年後の調査では全ての放射性核種は深さ25cm以内の土壌に保持されており、⁹⁰Srが地下水層に達したとしてもその移動速度は1.5 m/y_r程度であると予想されている。⁽²¹⁾ また、1955年には⁹⁰Srを300 Ci、F.Pを900 Ci含む高酸性廃液 4.2×10^4 m³を地中に実験的に注入し、その移動を詳しく調査しているが、1961年~1971年の10年間の⁹⁰Srの平均移動速度は約2 m/y_r、¹³⁷Csはほぼ0 m/y_rとのことである。⁽²²⁾ 放射性核種の地中での移動速度は、実地層についてこの他にも多く測定されている。例えば、米国のIdaho Chemical Processing Plantでは、2 pCi/mlの⁹⁰Sr、2 pCi/mlの¹³⁷Cs等を含む放射性廃液を1年当り 1.1×10^6 m³の割合で180 mの井戸を用いて直接帯水層中へ注入処分している。廃液中

に含まれる 3H 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、塩素イオン等の移動の追跡調査が行なわれているが、1964年から1972年の間の ^{90}Sr の最大移動距離は約1.1kmである。⁽²³⁾これは移動速度に換算すると140 m/y_rに相当する。

一方、通気層における放射性核種の移動についてはつぎのような報告がある。米国 Hanford 研究所では1952年～1956年の4年間に、3,000 Ciの ^{90}Sr 、2,000 Ciの ^{137}Cs 等75万Ciの混合F.Pを含む 1.5×10^5 m³の廃液がCribと呼ばれる地下構造物を通して地中に浸透させられたが、処分終了時には ^{90}Sr 、 ^{137}Cs とも地下水層には達しておらず、その移動深さは約45 m、つまり平均移動速度にすると約11 m/y_rということになる。さらに1966年に追調査が実施され、処分した ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の99.9%は地表面下5～10mの範囲に保持されていることが確かめられている。⁽²⁴⁾

放射性廃棄物の地中処分場で、放射性核種の移動が正確に追跡調査されているのは、処分された廃棄物が液体である場合がほとんどである。地中に処分された固体廃棄物から浸出した放射性核種が地中を移動したとの報告は稀である。米国 Savannah River 研究所では1953年～1966年の13年間に150万Ciの混合F.Pを含む低レベルβ・γ廃棄物が素堀りのトレンチ内に埋設されてきたが、1966年の調査ではβ・γ核種は地下水面に到達しておらず、その最大移動深さは2 mであることが実測されている。⁽⁵⁰⁾このことは核種の通気層中での平均移動速度が約0.15 m/y_rであることを示している。また、カナダのChalk River研究所では20 Ciの ^{90}Sr 、23 Ciの ^{137}Cs 等45 Ciの放射性核種を含む大きさ約0.7 ℓのガラス固化体25個を帯水砂層に埋設して、放射性核種のガラス固化体からの浸出と、地層中での移動とを実地層を用いて実験的に検討している。この実験によれば、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の帯水砂層中での移動速度は最大で、おのおの約4 m/y_r、3 m/y_rである。⁽²⁵⁾この他米国において廃棄物処分量の伸びが著しい商業埋立処分場においても、地中に処分された廃棄物から浸出した放射性核種が地中を移動していることがモニタリング・データ等によって示されているが、⁽²⁶⁾・⁽²⁷⁾その移動のパターンや移動速度等が正確に評価されるまでには至っていない。

このように、放射性核種の地中での移動速度は例えば地下水の移動速度に比べると十分に遅く、それ故、廃棄物の処分場から問題となる地点までの距離を確保すれば、放射性核種は仮に地中へ漏出したとしても問題となる場所に到達するまでに無害な程度にまで減衰してしまう。これが、放射性廃棄物の地中処分をささえる基本的な考え方である。

(2) 海洋処分

海洋処分は、放射性廃棄物処理によって発生した廃棄物をアスファルト、セメント等の固化材で固化し、比重を1.2以上とした後、2,000 m以上の水深を有する深海に投棄（深海投棄）したり、低レベルの廃液を沿岸から放流したりする（沿岸放流）方法である。

放射性廃棄物の海洋への最初の処分は1946年に米国によって実施された。米国は1962年に廃棄物の処分を地中処分に切り替える方針を決定したが、海洋処分は1969年まで続けられた。この間の廃棄物処分量は大西洋に約46,200 Ci（1963年以後は39 Ci）、太平洋に約15,000 Ci（1963年以後は185.5 Ci）と報告されている。⁽²⁸⁾同様な処分は1949年にイギリスによっても実施されている。⁽²⁹⁾さらに、1967年以来、欧州原子力機関（ENEA、現在NEA）の手によって1974年までに5回、合計約8万Ciの放射性廃棄物が北東大西洋の水深5,000 mの海域に投棄された。⁽³⁰⁾NEAによる海洋投棄は現在も継続されている。我国でも1955年以来15年間に合計約407 Ciの廃棄物セメント固化体が

日本放射性同位元素協会（現・日本アイソトープ協会）の手によって、伊豆諸島沖水深約3,000 mの海域に処分されたが、現在は中断されている。一方、沿岸放流については、1952年にイギリスが Windscale 沖にパイプラインによって廃液の放流を開始している。間接的な沿岸放流としては1944年米国 Hanford で Pu 製造の際に生じた廃液をコロンビア川を通じて北太平洋へ放流したこと等を挙げる ことができる。⁽²⁹⁾

放射性廃棄物処分の放射線学的安全性に関する試算・評価はすでにいくつか報告されている。^{(31)~(35)} 放射性廃棄物を海に処分しても、それが再び人の生活環境内へ戻るまでには長時間を要するため、放射性核種は自己崩壊によって減衰したり、大量の海水によって希釈される。これらによって安全性を確保しようとするのが海洋処分をささえる基本^的な考え方である。

(3) 宇宙処分

放射性廃棄物を地球の引力圏外あるいは太陽系外へ運び出すことができれば、それは処分の安全性・完全性から考えて、放射性廃棄物の理想的な最終処分法となる。宇宙処分法が廃棄物処分法として実用されるようになるには、なお時間が必要であるが、経済性を考慮しなければ現有の技術で実施することは可能である。⁽³⁶⁾ 現在、宇宙処分の実用化に向けての研究・開発が進められている。^{(37)~(40)} これらの研究成果によると、宇宙処分の対象となる廃棄物は、燃料再処理によって生じる高レベル・長半減期のアクチノイド廃棄物である。宇宙処分に要する費用は処分場所つまり廃棄物を太陽系外へ出すか、惑星軌道にのせるか、あるいは衛星軌道にのせるか等によって異なる。廃棄物を運ぶロケットの費用は宇宙連絡船や宇宙作業船が開発されることによって（1980年に実用化の予定）、著しく改善されるという。

(4) 消滅処分

消滅処分は、長半減期の放射性核種を原子炉で照射して短半減期の放射性核種に変えて減衰を早めたり、安定な核種に変える方法である。人間が創り出した放射性核種を人間の手で消滅させようとする本処分法の意義は大きい。現在、消滅処分の問題点を整理し、同処分法を実用化するための研究・開発が実施されている。^{(41)~(44)} 消滅処分の対象になる核種は、アクチノイド系列の放射性核種と、核分裂生成物（F・P）では半減期の長さや核分裂収率等から ^{85}Kr , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{99}Tc , ^{129}I 等が選ばれている。一般に、原子炉による消滅処分を実施するためには対象核種を廃棄物から分離する必要がある。消滅処分の効率から考えると、F・P核種を有効に処理するためには中性子束密度の大きな炉が得られることが不可欠の要件となる。一方、アクチノイド系列元素は消滅処分によって核分裂を生じて、F・Pと核分裂エネルギーになる。消滅処分によって新しいエネルギーが得られる（つまり、エネルギー・バランスがプラスになる）ことはないものの、F・Pの消滅処分に比べると条件はよい。アクチノイドの場合は、現在の商業用発電所によって処分することが技術的に可能である。例えば、アクチノイドをPWR炉で15回循環処理したところ、放射能毒性が200倍~40倍減少する効果を得たことが報告されている。⁽³⁷⁾ 消滅処分は、アクチノイド系列放射性核種の処分法として有望であると思われる。

(5) その他の処分

放射性廃棄物の処分方法の内には、上記の4方法の範ちゅうに属さないもの、あるいは属しないと考える方が適切と思われる方法がある。高レベル放射性廃棄物を海洋底に埋設する方法や、廃棄物を月や火星等へ運びそこで地中処分する方法等がそれらの例である。その他にも、高レベル廃棄物の将

来の処分方法として、種々の方法・方式が考えられている。⁽⁴⁵⁾ 例えば、深い地質中への処分（地質処分）、南極やグリーンランドの極水中への処分、等である。

放射性廃棄物が人類に及ぼす障害の大きさは、廃棄物の発生後 350 年までは F、P（主として ^{90}Sr ）、その後 2 万年までは超プルトニウム元素（主として A_m ）、その後約 100 万年までは再処理工程で未回収の Pa、さらにその後は未回収の U によって支配されると考えられている。それ故、例えば F、P 廃棄物の処分方法は廃棄物を数百年間人の生活環境から隔離できることが必要条件となり、アクチニド系列元素を含む廃棄物の処分方法は数百万年間の隔離ができることが必要条件になる。例えば、廃棄物を南極の氷蓋中にとじこめる方法では、廃棄物を隔離できる期間は 10～20 万年と推定されている。⁽³⁷⁾ ⁽⁴⁷⁾ それ故、南極の極水中に処分する方法は F、P 廃棄物の処分方法としては適するが、アクチニド廃棄物の処分方法としては適しないことになる。その他の処分方法については現在研究・開発が続けられているが、アクチニド廃棄物の最終処分法として現在有望な方法は宇宙処分、消滅処分、地質処分等の他にはなさそうである。

(6) 各処分法の比較

放射性廃棄物を人の生活環境から隔離できる期間の長さから考えて、海洋処分と地中処分は主として F、P 廃棄物を、宇宙処分と消滅処分は主としてアクチニド廃棄物を対象にする処分法である。処分方法を海洋処分と地中処分とに限っても、両処分法を総合的に比較・検討した例は、ほとんど見出すことができない。

米国の、その廃棄物処分方針を海洋処分から地中処分に変更した（1962 年）ことはすでに述べたが、その主な理由は、①地中処分は海洋処分に比べて 3～5 倍（地中・海洋の両処分の経験を有する N E C O 社によると 6 倍）経済的であること、②全国民の $\frac{2}{3}$ 以上が沿岸に住んでいて、海洋処分に対する反対が強いこと、③充分な土地があること、また廃棄物の輸送の面からも地中処分が望ましいこと等であると言われている。一方、イギリスでは現在、廃棄物の処分法として地中処分と海洋処分とが併用されている。すなわち、主に原子力公社関係施設から排出される低レベル固体廃棄物は Drigg 地中処分場で埋設処分され、イングランド南部の施設から発生する低レベル固体廃棄物は適当な場所がないので海洋処分されている。Drigg 処分場まで輸送して地中処分するよりは、海洋に処分する方が経済的であるとされている。⁽⁴⁷⁾⁽⁴⁸⁾ 包装した固体廃棄物の海洋処分は地中処分よりも一般的には高価につく。⁽²⁹⁾

廃棄物の処理・輸送・処分等について経済的な評価を総合的に行なうことは、経済性に影響を与える要素が多くかつ複雑であるから、海洋処分と地中処分の経済性を同じ基準の下に比較することは中々難しい。しかしながら、現在までの経験によれば、両者の経済性を支配する要因の 1 つに輸送問題があることが伺える。それ故、廃棄物が発生する原子力施設の敷地内で地中処分することができれば、それが最も経済的な処分法になる可能性が高い。また、地中処分法を採用する場合には、処分後の廃棄物の状態をモニタリングによって監視できること、さらに、場合によっては処分した廃棄物を再びとり出して再処分する等の発生源対策を講じることがもできる。

1.2.2 各国の廃棄物処分方針

世界各国の放射性廃棄物処分の方針をみても、廃棄物処分に関する最終的な責任は原則的に国

または政府が負うことになっているようである。アメリカ合衆国では、連邦政府と州政府の認可をうけた民間業者が営利活動の一環として放射性廃棄物を受託し、地中処分している。ただし、処分用地は国有地又は州有地に限られ（業者が私有地を買収した場合は、それを国又は州に移管する）、廃棄物を処分する場合には、処分量に応じた信託基金（trust fund）を積み立てることが義務づけられている（廃棄物1 m³を処分する毎に530円～1,600円）。これは企業の営利活動が終了した後であっても、連邦政府、あるいは州政府が長期にわたって処分場を管理するための経済的基盤を保証することが目的となっている。廃棄物処分の最終的な責任は国または政府が負うという一般原則は欧州各国でも採用されているようである。⁽⁸¹⁾これは私企業の営利活動が終了した後、放射性廃棄物が非管理の状態になり、国または政府のもつ公共保護の指命達成が損われないようにするとの考え方が基礎になっている。アメリカ合衆国の例でも明らかなように国または政府が責任をもつというのは、安全確保の面においてであって、必ずしも経済的な面で責任をもつことを意味するのではない。また、国または政府であっても、廃棄物が無害な程度にまで減少するに必要な期間、継続するとは限らないが、そのような長期にわたっても一応は経済的な配慮がなされていることに留意する必要がある。

国際会議等で公表された各国の中・低レベル放射性廃棄物の処分方針を整理して表-1.6に示す。同表の作成にあたっては、現在実施されている処分法を記載することを第1とし、処分計画が明らかな場合はその旨説明を補って記載した。処分の方針が定まっていない国は記載を省略した。『処分』と『貯蔵』とは、廃棄物を再び取り出すことをあらかじめ想定する（貯蔵）か否か（処分）によって概念的には区別されることが多いが、⁽²⁹⁾例えば永久貯蔵（permanent storage）、最終貯蔵（ultimate storage）と処分（disposal）の間には、厳密な差がない。表-1.6は中・低レベル放射性廃棄物が多く、多くの国で地中処分され、あるいはされようとしていることを示している。

世界各国の放射性廃棄物管理の方針は、国際放射線防護委員会（ICRP）が勧告したALAP（as low as practicable）の原則、⁽⁸²⁾あるいはALARA（as low as readily achievable）の原則⁽⁸³⁾を尊重して、ここ数年来厳格になりつつある。カナダの廃棄物管理方針の変更（処分から貯蔵へ）はこの具体例である。高レベル廃棄物をどのような方法によって処分するかは、世界的に定まっていない。

表-1.6 各国の中・低レベル放射性廃棄物の最終処分法

| 国名 | 採用している最終処分法 | 文献 |
|----------|---|-----------------------------|
| アメリカ合衆国 | 地中処分（浅層埋設、ハイドロ・フラクチュアリング、地下浸透等）1946年～1969年海洋投棄の経験あり、現在中止 | (28),(29),(49) (50)～(55) |
| カナダ | 地中処分（浅層埋設、地下浸透等：最近貯蔵に変更） | (22),(56),(57) |
| メキシコ | 地中処分（浅層埋設・予定？） | (58) |
| イギリス | 地中処分（浅層埋設、1960年以降） 海洋処分（独自、1967年以降はENE Aに参加） | (29),(48) (59)～(61) |
| ノルウェー | 地中処分（浅層埋設、I F A -kjeller） | (62) |
| スウェーデン | 永久貯蔵（適地選定中） | (63) |
| オランダ | 海洋処分（ENE Aに参加） | (64) |
| ベルギー | 海洋処分（ENE Aに参加）将来地下永久貯蔵も計画 | (65) |
| スイス | 海洋処分（ENE Aに参加） 永久貯蔵を予定（廃鉱山等適地選定中） | (63) |
| 西ドイツ | 最終貯蔵（岩塩坑AsseII） | (66),(67) |
| フランス | 永久貯蔵（浅層埋設、1958年～1969年Bauzot、1969年以後La Hague）海洋処分（ENE Aに参加1971年以降中止） | (47),(68) |
| スペイン | 永久貯蔵を予定（廃鉱山） | (29),(69) |
| イタリア | 永久貯蔵（適地選定中、一部浅層埋設中） | (63),(70) |
| オーストリア | 永久貯蔵を予定（石コウ鉱山） | (63),(71) |
| チェコスロバキア | 永久貯蔵（人工のトンネル、石灰岩の廃鉱） | (72) |
| ソ連 | 地中処分（コンクリート・ブロック、地下注入等） | (73),(77) |
| インド | 地中処分（浅層埋設・予定？） | (78) |
| ポルトガル | 地中処分の計画あり | (79) |
| オーストラリア | 地中処分（浅層埋設） | (80),(92) |

1.2.3 放射性廃棄物地中処分の実際

地中処分の対象となる廃棄物は中・低レベルの液体・固体廃棄物および気体廃棄物である。廃棄物のレベル区分についてはIAEAの標準例がある⁽⁸⁴⁾がここでは慣用的に用いる。すなわち、作業員に個人しゃへいを要しないものを低レベル、要するものを中レベル、核燃料再処理工程より排出されるものを高レベルと呼ぶ⁽⁸⁾ことにする。廃棄物の地中処分は処分場の立地場所の局地的な条件に強く制約されるため、場所によって種々の方式が試みられている。ここではこれらの処分方式の内、主要であると思われる例を紹介する。

(1) 固体廃棄物の地中処分

① 低レベル固体廃棄物

原子力施設の管理区域から排出される放射能濃度が極めて薄く体積の大きい、いわゆる雑固体とよばれる廃棄物が主である。ビニール袋、段ボール箱、木箱にいれ、何ら前処理を行わず、そのままトレンチ（廃棄溝）に埋設されることが多い。排煙の処理やほこりの処理がやっかいなこともあって敬遠されてきた焼却や圧縮による減容処理が、処分量が年々莫大になることから、最近再評価される傾向にある。

トレンチは、ほとんどが地表面に開削された素掘りのもので、その大きさは処分場、また同じ処分場内でも位置によって異なる。例えば Drigg 地中処分場（英国）では幅 18～27 m、深さ 3.7～4.6 m、長さ 640 m のものが用いられている。1 つのトレンチの収容廃棄物量は約 76,000 m³、15,000 ton 程度、これは Windscale で発生する廃棄物の 15～20 年分に相当するとされる。⁽⁵⁹⁾ アメリカ合衆国では⁽²²⁾ Oak Ridge 研究所の幅約 3 m、深さ 5 m、長さ約 30 m、ロスアラモス科学研究所の幅 15 m、深さ 8 m、長さ 180 m、Hanford 施設の底幅 1.5 m～3.5 m、深さ約 5 m、商業埋立処分場では Barnwell 処分場の幅 15 m、深さ 6 m、長さ 146 m、West Valley 処分場の幅 11 m、深さ 6 m、長さ 180 m、Morehead (Maxey Flats) 処分場の幅 24 m、深さ 7.6 m、長さ 200 m、Beatty 処分場の幅 27 m、深さ 9 m、長さ 180 m 等がある。Chalk River 研究所では幅 2.4 m、深さ 3 m、長さ 90 m である。トレンチの大きさは地下水位、土質、掘削機械等によって定められているようである。商業埋立処分場のトレンチの大きさや構造は州政府・連邦政府による認可条項として細かく定められている。トレンチが廃棄物でいっぱいになれば、これを土で埋め戻す。埋め戻し上の厚さは処分場によらずほぼ 1 m 程度で、中央にうず高く盛り、表面にはクローバ等を植えることが多い。トレンチにはモニタリングのための井戸が設置される他、トレンチ内に溜まる雨水浸透水をくみあげて処理する等の安全対策が講じられることがある。アメリカ合衆国では、商業埋立場（3社6処分場）における、特に β ・ γ 廃棄物の処分量の伸び率が著しい。⁽²⁸⁾

② 中レベル固体廃棄物

廃水処理系統に用いるイオン交換樹脂、グローブ・ボックスやホット・ラボと呼ばれる高濃度の放射性物質を使う実験室から排出される廃棄物が主である。素掘りのトレンチに廃棄物を直接埋設することはなく、容器にいれたり、処分施設内へ処分するのが普通である。コンクリート製あるいは鉄製および素掘りの堅穴（管）内に、容器に容れた廃棄物を投入したり（例えば、カナダの Chalk River 研究所、米国の Los Alamos 研究所）、鉄製の箱に廃棄物を収納してトレンチ内へ埋設したり（米国立原子炉試験場、Savannah River 研究所）、地中に設けたケーソン中に廃棄物を収納したり（米国、Hanford 施設）、ドラム罐詰にした廃棄物をコンクリート製ピットに収納し、ピットがいっぱいになるとコンクリートを流し込んでピット全体をコンクリートの固まりにしたりする（Chalk River 研究所）。Hanford で使われているケーソンは鉄製で容積約 22 m³、1 ケーソン当り収納される廃棄物の放射線量は平均 800 Ci、最大で 57,000 Ci である。Chalk River 研究所のコンクリート・トレンチは幅 4.8 m、深さ 3 m、長さ 61 m であり、これを 40 区分して用いるが、最終的には約 880 m³ のコンクリートの固まりができることになる。同じような処分法がソ連でも採用されている。⁽⁷⁷⁾ モスクワ市放射線安全中央局では、コンクリート容器にいれた固化廃棄物を、液体廃棄物で粘りませメントで固めている。最終的には地下数 m、地上 3 m たて、よこそれぞれ 20～30 m 程度のコンクリートの固まりができることになる。

③ 高レベル固体廃棄物

高レベル固体廃棄物、すなわち使用済核燃料の再処理によって生ずる放射性固体廃棄物は世界のいづれの国、いづれの方法によっても処分されていない。この廃棄物は放射能レベルが極めて高いため、しゃへいが必要なだけでなく、自己発熱するため除熱しなければならない。廃棄物を液体のまま貯留していると除熱、タンクの交換等の維持管理が繁雑であるだけでなく、何らかの事故で容器が損傷し

た場合には環境に及ぼす影響も大きくなるから、将来はセラミックやガラスで固化することが考えられている。^{(85),(86)} 米国の Idaho 化学処理工場では硝酸アルミニウムを多量に含む高レベル廃液を噴霧煏焼してできた粒状固形物が、地下 6 m の地中に設置されたステンレス鋼製ビン中に貯蔵されている。⁽⁸⁷⁾ この粒状固化体の比放射能は 130 Ci/kg で、発熱量は $142 \sim 430 \text{ kcal/hr} \cdot \text{m}^3$ 、貯蔵中のビン内の最高温度は $225 \text{ }^\circ\text{C}$ であったという。このビンはコンクリート容器内に納められているが、必ずしもコンクリート容器は必要でないとの見込みが得られている。貯蔵用ビンの耐用年数は約 500 年と見込まれている。高レベル固体廃棄物の処分では、土のもつ放射線に対する遮へい効果が利用されているにすぎない。

④ 大型機器

原子力機器や施設が耐用年数に近づくと、ドラム罐等には収容できない大型の機器や装置が廃出されるようになる。これらには、グローブ・ボックス、再処理施設のプロセス機器、廃原子炉等がある。米国やカナダではこれらの大型機器が地中に処分されている。⁽²²⁾ Hanford の 200 E 地区では、Purex 法による再処理施設を解体し、平台の貨車にのせて貨車ごと半地下式のトンネル内に処分している。Savannah River 研究所では、例えば 6 万 Ci の放射能を有する再処理施設の反応器を炭素鋼コンテナに収納し、コンテナごと地中に埋設している。廃原子炉の処分例も多い。カナダの Chalk River 研究所では事故を起した N R X 炉の他、2 基の研究用原子炉（出力 40 MW および 200 MW ）が、米国の商業埋立処分場である Barnwell 処分場では極地用の原子炉、研究用原子炉（出力 10 MW ）等 3 基が、地中に処分されている。また米国原子力委員会は 1971 年～1974 年にかけてエルク・リバー炉（1960 年完成 1962 年臨界、電気出力 22.5 MW の BWR 炉）を約 600 万ドルを費して、解体・撤去し、発生した固体廃棄物をワシントン州 Richland、ケンタッキー州 Morehead、イリノイ州 Sheffield の認可埋設処分場で地中処分している。⁽⁸⁸⁾

⑤ 超ウラン元素廃棄物

米国では同じ固体廃棄物でも $\beta \cdot \gamma$ 廃棄物と超ウラン元素で汚染した廃棄物（ α 廃棄物）とでは管理の方針が異なる。すなわち、 $10 \text{ } \mu\text{Ci/g}$ 以下の超ウラン元素廃棄物は地中に処分するが、 $10 \text{ } \mu\text{Ci/g}$ 以上の廃棄物は 20 年間を目途にして再び取り出しが可能なように工学的に貯蔵することになっている。20 年後には廃棄物を再び取り出して、国の処分場（例えば岩塩層）で最終処分するようになっている。再び取り出し可能な工学的貯蔵法は施設によって種々な方法が試みられている。例えば、Oak Ridge 研究所では、廃棄物を 200 ℓ のドラム罐に容れて半地下式の簡易建屋に貯蔵したり、コンクリート管中に貯蔵しており、Savannah River 研究所ではコンクリート・キャスク（直径 2.1 m 、高さ 2.3 m 、重さ約 9 ton ）に置いて地上に保管したり、地表面に打設したコンクリート・スラブ上に廃棄物をいれた垂鉛メッキ・スティールドラムを積み重ねて土で覆ったりしている。Los Alamos 科学研究所ではドラム罐あるいは耐水耐火処理した木箱中に廃棄物をいれて容器ごと地下トレンチに埋設し、

Idaho 原子炉試験場ではパッドと呼ばれる方式によってドラム罐あるいは耐水耐火処理した木箱中に廃棄物をいれて地中に積み上げて覆土している（1 つのパッドは幅 45.7 m 、長さ 222.5 m 、高さは端部で 3.6 m 、中央部で 5 m ）。一般に商業埋立処分場では、超ウラン元素廃棄物は処分あるいは貯蔵されない。核燃料物質を含む廃棄物を貯蔵する場合には核臨界性を除くため、例えば 200 ℓ ドラム罐当り 200 g 以上の核燃料物質を含んではならない等の制約が課される。

(2) 液体廃棄物の地中処分

① 低レベル液体廃棄物

低レベル液体廃棄物の地中処分法として実用されている方法は主として、浸透池に廃液を導いて地下浸透をさせる方法と、浸透溝等の施設を用いて地下浸透させる方法とである。両者は廃液が大規模にたん水するか否かの相違があるだけで、廃液が自然に浸透するのにかまける点等本質的にはほぼ同じ処分方法である。米国の Savannah River 研究所では河川へ直接放流するにはやや放射能濃度が高い廃液を地下浸透させるために浸透池が使われている。廃液の浸透池への供給速度は $100 \sim 1000 \text{ m}^3/\text{week}$ 程度である。この池は人工的に掘られたものであり、10年以上にわたって使用されている。 ^3H 、 ^{131}I を除き全部で $2,500 \text{ Ci}$ の核分裂生成物と 13 Ci の超ウラン元素が処分されたが、近くの小川にまで到達した放射性核種は ^3H のみである。⁽⁵⁰⁾ 同じく Hanford 施設では $3 \times 10^5 \text{ m}^3$ もの浸透池が用いられている。浸透池への廃液の供給量は降雨量、蒸発量、地下浸透量および廃液の供給量が平衡して池の水位が一定になるように定められている。Hanford での廃液の供給量は $30,000 \text{ m}^3/\text{day}$ である。使用開始以来20年以上の経験を有し、 β 放射能にして $20,000 \text{ Ci}$ を含む $3 \times 10^8 \text{ m}^3$ の廃液が処分されている。⁽⁵²⁾ カナダの Chalk River 研究所では幅 37 m 、深さ 2.5 m 、長さ 70 m の溝を作ってその底に $4 \sim 6 \text{ cm}$ 大の石を充填して低レベル廃液の処理施設として用いている。1966年までに同施設を用いて処分した廃液は総量で $12,335 \text{ Ci}$ 、内 ^{90}Sr が $2,500 \text{ Ci}$ を占めていた。⁽⁵⁷⁾ 低レベル廃液であるとはいえ放射性廃液を地表から浸透処分している例は北米大陸以外にはないようである。⁽⁸⁹⁾ 米国の商業埋立処分場では廃液は処分されない。処分場まで液体のまま運搬し、処分場で固化した後地中処分する方式が一時期採用されていたが、現在はそのような処分法は禁止されている。

② 中レベル液体廃棄物

中レベル液体廃棄物の地中処分法として用いられている方法には、地中に構築した設備を用いて地中に浸透させる方法、地下注入する方法、セメント等の固化剤と共に地下注入し地中で固化させる方法等がある。米国の Hanford 施設では Crib と呼ばれる地中設備に中レベル廃液をパイプで導いて浸透処分している。設計処分速度は $400 \text{ l}/\text{m}^2 \cdot \text{day}$ で、廃液の供給は Crib の直下約 50 m にある地下水中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 等の長半減期核種濃度が飲料水中最大許容濃度の $1/10$ に達するまで続けられる。これは、地下水面までの土壌が放射性核種を保持する能力を考慮してのことである。Crib の耐用年数は $3 \sim 5$ 年である。1967年までにこの方法で処分された廃液は $2.3 \times 10^7 \text{ m}^3$ 、 $3 \times 10^6 \text{ Ci}$ にも及ぶが、Crib の下の地層に残存している放射エネルギーは $5 \times 10^5 \text{ Ci}$ に減少しているとのことである。⁽²⁴⁾、⁽⁵²⁾ 廃液を地下注入する方法は米国では、ここ数年規制される傾向にあるが、唯一の例を Idaho 国立原子炉試験場にみることができる。⁽²⁸⁾、⁽⁸⁹⁾ 規制されるに至った主な理由として、廃液を注入する地層が人の生活圏から隔離されていることを確認することが難しく、非経済的であること等が挙げられている。Idaho 国立原子炉試験場では地表面下約 180 m の地下水層（この地下水層は人の生活圏から隔離されていない）中へ主として ^3H を含む低中レベル廃液を平均 $4,300 \text{ m}^3/\text{day}$ の割合で注入処分している。⁽⁹⁰⁾ 米国以外ではソ連の例が有名である。⁽⁷⁴⁾、⁽⁷⁷⁾、⁽⁹¹⁾ ドミトログラードでは地表面下 $1,000 \sim 1,500 \text{ m}$ の地層に $10^{-2} \sim 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ の廃液を $360 \text{ m}^3/\text{day}$ の割合で注入し、1966年以来約 60 万 m^3 を注入処分している。Malekess では1963年～1970年の間に深さ約 400 m の5本の注入井戸を用いて $1.2 \times 10^6 \text{ m}^3$ 、 $5 \times 10^7 \text{ Ci}$ の廃液が注入処分されたという。⁽⁹¹⁾ 西独でも $1 \text{ Ci}/\text{m}^3$ 程度の ^3H 廃液を

地表面下約 900 m の地層中へ注入処分しようとしている。⁽⁹¹⁾

米国の Oak Ridge 研究所では 1967 年以来、Hydrofracturing と呼ばれる特殊な方法で中レベル廃液を地中処分している。^{(22),(51)} この方法は、放射性廃液をセメントやフライ・アッシュ等と粘りませてペースト状にし 105 kg/cm²～175 kg/cm² の圧力を加えて地表面下 300～400 m の頁岩層中の水平クラック中に押し込む。廃液は時間が経てば固化して頁岩の一部になってしまう（半径約 150 m、厚さ 3 mm の廃液の固化体が鉛直方向に幾枚もできることになる）。この頁岩層は数 1,000 年間にわたって安定な地層であったと推定されており、それ故本方法は極めて安全性の高い処分法であるとされている。現在は 1967 年以來使用している頁岩層のクラックを使いつくしたので、新しい位置へ処分位置を移動させつつある。

③ 高レベル液体廃棄物

井上は、高レベル液体廃棄物が直接地中に処分された例があることを紹介している。⁽⁸⁾ 最近ではこのような例は皆無で、全て貯蔵用タンク内に貯蔵され、厳重な管理をうけている。

(3) 気体廃棄物の地中処分

原子力施設の地下立地や、再処理工場から排出される放射性気体廃棄物を処理することを目的にして研究・開発が実施されている。^{(19),(90),(93),(94)} 例えば、米国 Idaho 国立原子力試験場では 1,000 Ci の ¹³³Xe を含む空気約 28,000 m³ を地表面下約 40 m の地中に注入する実験を進めている。⁽¹⁹⁾ 注入終了後 24 日間に地表面を経て大気中に逸散した ¹³³Xe はたかだか 0.5 Ci であり、¹³³Xe は地表に到達するまでにその濃度が 10⁻⁸ 倍に減少したことが確かめられている。放射性ガスの地中での挙動に関する理論が同実験の実測データを用いて検討されており、これらの理論を用いて放射性気体廃棄物の地中処分場を設計しうることが示されている。⁽⁹³⁾

1.2.4 放射性廃棄物地中処分の経済性

放射性廃棄物の管理方法の設計、すなわち、廃棄物の種類、量（体積・放射エネルギー）、質、発生場所等を考慮して、どのように処理・処分方法を組み合わせて廃棄物を管理するのが最も合理的であるかという問題は極めて重要である。しかし、合理性の判断基準を経済性に求め、処分法を地中処分と海洋処分とに限定しても、両処分法をどのように組み合わせて廃棄物を処分するのが合理的であるかという問題はまだ完全には解決されていない。

ここでは、諸外国で実用されている地中処分の経済性を整理する（表-1.7 参照）。表-1.7 に示した廃棄物の処分費用は、処分用施設の構築・処分作業・処分用容器・安全管理・廃棄物の輸送等に要する費用を全て含んでいる。ただし、処分用施設の操業予定年数や利率等費用計算の基礎は、処分場や国によって異なり内には費用計算の基礎が明らかでないものもある。Barnwell 処分場他 3ヶ所の商業埋立処分場の処分費用は、処分場へ運び込まれる廃棄物の引き受け価格である。廃棄物の処分に要する費用の内訳については次のような報告例がある。すなわち、米国 Los Alamos 研究所では、廃棄物をトレンチ内に処分する場合に必要な費用の 12% は安全管理に、12% は埋設に、16% は輸送に、28% は廃棄物の収納容器に、そして残り 32% は人件費となっている。⁽⁴⁹⁾ 英国の Drigg 地中処分場では、必要な費用の 45% が人件費に、30% がトレンチの堀削と埋め戻しに、20% が輸送等に費やされている。⁽⁹⁹⁾ 一方、廃棄物の最終処分法として考えられている種々の処分法の経済性の比較については表-

表-1.7 放射性固体廃棄物の地中処分法の経済性

| 廃棄物の放射能レベル | 処分場 | 国 | 処分量(m ³ /y _r) | 処分法 | 費用(円/m ³) | 文献 |
|------------|----------------|----|--------------------------------------|---------------------------|-----------------------|----------|
| 低レベル | Drigg | 英 | 4,600 ~ 5,000 | 浅層埋設 | 1,500 ~ 2,160 | (59) |
| | Hanford | 米 | ~ 6,100 | " | 6,000 ~ 10,800 | (52)(53) |
| | Savannah River | 米 | 14,700 | " | 3,700 ~ 7,200 | (53) |
| | Idaho NRTS | 米 | 8,400 | " | 3,400 | (53) |
| | Oak Ridge | 米 | 9,400 | " | 8,600 | (53) |
| 低~中レベル | Barnwell | 米 | | 浅層埋設(商業処分場) | 11,700 | (22) |
| | | | | 0.0 ~ 0.2 R/hr | | |
| | West Valley | 米 | 5,400 | 0.2 ~ 1.0 R/hr | 17,000 | (22) |
| | Morehead | 米 | 11,300 | 1.0 ~ 5.0 R/hr | 26,500 | (22) |
| | Beatty | 米 | 4,500 | 5.0 ~ 10.0 R/hr | 45,000 | (22) |
| | | | | 0.2 R/hr 以下 | 15,500 | (22) |
| | | | | 10 ⁿ Ci/g 以下のα | 42,000 | (22) |
| | Los Alamos | 米 | 5,000 ~ 7,000 | 石灰岩廃坑 | 18,500 | (22) |
| | Asse II | 西独 | 1,200 | 浅層埋設, 超ウラン元素廃棄物 | 2,750 | (95) |
| | Hanford | 米 | | 岩塩坑 | 6,000 | (49) |
| 中レベル | | | | 浅層埋設 | 4,800 | (96) |
| | | | | 地中のケーンソン | 51,000 | (52) |
| 高レベル | | | | 半地下式トンネル | 900,000 | (52) |
| | Hanford | 米 | | ステンレス・ビンに溶れて地下貯蔵 | 104,000 | (52) |
| | | | | 243万 ~ 282万 | (87) | |

(注) 費用の換算は対ドル平価を基準にし1 US \$ = 300 円を用いた

1.8のような報告例がある。⁽⁴⁵⁾ここで、処分の対象にされている廃棄物は使用済み核燃料の再処理によって生じる高レベル廃棄物である。処分法の費用推定の精度は表-1.7の場合程は正確ではなく、また費用推定の基準も同じではないから表-1.8はこれらの処分方法の経済性を比較する十分な判断基準にはならない。地中処分等の処分法に比べて、宇宙処分法、消滅処分法等はほぼ10倍高価につくことがうかがえる。

表-1.8 廃棄物最終処分法のコスト比較例

(文献(45)より引用、一部省略)

| 最終処分の方法 | 再処理廃棄物 1 ton当りコスト (万円/ton) | 単位電力量 当りコスト (円/kW・hr) |
|-------------------------|----------------------------------|-----------------------------|
| 1 地中処分 | | |
| 廃鉱山への固体廃棄物の処分 | 270～360 | 0.010～0.014 |
| 人工の洞窟への固体廃棄物の処分 | 360～510 | 0.014～0.019 |
| 廃鉱山への液体廃棄物の処分 | 192 | 0.007 |
| 爆発で造った洞窟への液体廃棄物の処分 | 189 | 0.007 |
| 深い地層への固体廃棄物の処分 | 300～330 | 0.012～0.012 |
| 深い地層への液体廃棄物の処分 | 240 | 0.009 |
| ハイドロフラクチャリングによる液体廃棄物の処分 | 330 | 0.013 |
| 2 極氷中への処分 | 600～720 | 0.023～0.027 |
| 3 海洋底への埋設処分 | 420～510 | 0.016～0.019 |
| 4 宇宙処分 | | |
| 衛星軌道・楕円惑星軌道 | 1200 | 0.045 |
| 太陽系からの脱出 | 2700 | 0.102 |
| 5 消滅処分(核分裂炉) | 1140 | 0.045 |

(注) 各数値は各々の処分法の経済分析の基礎が必ずしも同一ではないので厳密な比較はできない。大略の参考値と考えるべきである。

1.3 我国における放射性廃棄物管理の現状

放射性廃棄物の発生量および蓄積量がかなりの量になっていること、および廃棄物量が将来にわたって増々増加するであろうことはすでに述べた。現在までに発生した放射性廃棄物は、原子力発電所においては発電所敷地内に、大学・病院・研究施設・R I使用事業所等で排出される廃棄物については日本アイソトープ協会によって回収され、日本原子力研究所・東海研究所に保管されている。日本原子力研究所大洗研究所は独自の廃棄物保管場を有しており、近く本格操業にはいる再処理施設も同様の保管場を有する予定である。発電所の廃棄物保管施設は主として倉庫であるが、前述の東海研究所、大洗研究所では廃棄物の放射能レベルに応じて種々の貯蔵方式が採用されている。⁽⁹⁷⁾

これらの放射性廃棄物をどのような方法によって処分するか、その基本方針を我国は最近明らかにした。この基本方針の中では、地中処分法と海洋処分法とが実用的な最終処分法であるとして具体的に検討されている。原子力委員会は、廃棄物処理・処分に関する研究開発の従来の成果を整理すると

共に、今後実施すべき研究・開発課題を設定しつつあり、同時に廃棄物対策のマスター・スケジュールを策定しつつある。図-1.3は同委員会が中間報告書において示した放射性廃棄物対策プロジェクトのスケジュールである。⁽⁹⁸⁾ 廃棄物の海洋処分は、最初に同処分法が検討されてからすでに10数年を経ており、⁽⁹⁹⁾ かなり準備が進んでいる。試験的の海洋処分は昭和53年度より開始の見込みであり、すでに処分海域の選定や処分する廃棄物が満たすべき要件の策定等も終わっている。一方、放射性廃棄物の地中処分については、放射性物質を地中に埋設することが法律によって禁止されている⁽¹⁰⁰⁾ことも原因として、廃棄物の有望な処分方法であるとの位置づけをされるようになって以来⁽¹⁰¹⁾ 数年しか経っていない。それ故、図-1.3よりも明らかなように地中処分のスケジュールは海洋処分のスケジュールに比べると数年の遅れがある。図-1.3中、海洋処分、陸地処分*の対象となる放射性廃棄物は、中・低レベル固体廃棄物である。

放射性廃棄物の処分に関する業務・技術開発を一貫して実施する機関として、1976年10月、財団法人原子力環境整備センターが発足した。我国においても、国の責任の下に放射性廃棄物が処分されることになる。

1.4 本研究の目的

放射性廃棄物の処理・処分は、早くから原子力発電の技術（炉工学等）と並んで、原子力平和利用推進のための車の両輪と言われてきた。しかしながら、放射性廃棄物処理・処分にたずさわる研究者数の不足、研究予算の不足等がわざわざいって、この分野の研究は比較的少数の研究者によって学術的に発展させられてきた傾向が強い。この傾向は放射性廃棄物地中処分の研究分野において特に著しいといえる。

近年、原子力発電の技術が核燃料物質の採鉱から廃棄物処理・処分までを含む総合システムとして把握されるようになってきた。既述の核燃料サイクル論がそれにあたる。このような検討によって原子力発電システムの見直しが進められるにつれて、原子力平和利用の推進のためには廃棄物処理・処分問題の解決が不可欠であることが増々強く認識されるようになってきた。1976年6月、国の方針として放射性廃棄物対策プロジェクトの目標（図-1.3参照）が策定されたのも、これらの事情を反映したものと考えられる。

本研究は、核燃料サイクルの内、いわゆるダウン・ストリーム（バック・エンド）の1部を構成する放射性廃棄物の最終処分問題に光をあて、特に放射線学的安全性の面から廃棄物地中処分の一体系を提示することを目的とする。放射性廃棄物を地中に処分する場合には、廃棄物の処分に伴って生じると期待される放射線障害の程度が限度以下であることが先ず保証されねばならない。このためには、(1)環境中に漏出した放射性物質の移行過程を把握して、(2)廃棄物を地中処分することによって生じると期待される潜在的放射線障害の程度を推定する手法を開発し、(3)廃棄物処分場を安全性を確保する観点から、最も望ましい位置に立地させ、さらに(4)処分の実施後は当該処分場に処分した廃棄物中に含まれる放射性物質がどのように環境中を移動し、人によって摂取されるかを監視し、必要な場合には有効な対策を講じる、一連のシステムが準備されねばならない。本研究では、廃棄物地中処分シス

* 地表面あるいは地表面下において実施する保管（貯蔵）と地中処分とを併せて陸地処分と総称している。⁽⁹⁸⁾ 後述するように、本論文では地中処分に重点を置いて検討する。

図-1.3 放射性廃棄物対策プロジェクトの目標 (参考)

| 項目 | (西暦) | (76) | 51 | 52 | 53 | 54 | 55 | 56 | 57 | 58 | 59 | 60 | (85) | 61 | 62 | 63 | 64 | 65 | (90) | 66 | 67 | 68 | 69 | 70 | (95) | 71 | 72 | 73 | 74 | (2000) | 備考 | | | | | | |
|-----------------|----------|------|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|------|----|----|----|----|----|------|----|----|----|----|----|------|----|----|----|----|--------|----|--|--|--|--|--|--|
| | 昭和年度 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 高レベル廃棄物対策プロジェクト | 試運転 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 動燃再処理工場 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 高レベル廃液貯蔵 | 施設 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 増設 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 高レベル廃液固化処理 | 調査研究 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 設備設計 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 工学貯蔵 | 調査研究 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 詳細設計 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 地層等処分 | 調査検討 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 試験地選定 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 海洋処分プロジェクト | 準備 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 試験的処分・評価 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 陸地処分プロジェクト | 立地調査 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 安全評価 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| サイト内地中処分 | 立地調査 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 安全評価 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 地中処分 | 立地調査 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 安全評価 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 陸地保管 | 立地調査 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 安全評価 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |

本格処分はとくにレベルの低い固体廃棄物を指す

テムを構成するために(1)~(4)の問題にとりくみ放射性廃棄物地中処分を設計し、管理するための理論・手法を提示することを目的にする。

第1章では、放射性廃棄物の処分問題をめぐる内外の現状を整理すると共に、原子力の平和利用を推進するためには放射性廃棄物の安全な処分方法を確立することが不可欠であり、廃棄物を安全に地中処分するためには、地中処分場を合理的に立地選定する必要があること、安全性を評価する方法を確立する必要があること等を指摘し、本研究の目的が4つの課題に集約されることを述べた。

第2章では、既述の4課題の内、第1の課題すなわち、環境中に漏出した放射性物質の移行過程を把握する課題の理論的側面について検討する。すなわち、まず放射性物質の地下水層における挙動を記述する従来の諸理論を紹介する。ついで地下通気層における放射性物質の挙動を、土壤水分の非定常浸透現象を考慮して記述する基礎式を提案し、従来の理論との関係を数学的に明らかにすると共にその物理的意味について検討する。

第3章では、第1の課題の実験的側面について検討する。すなわち、第2章で紹介・提案した理論を検証するための実験的研究を実施する。まず、放射性核種が土壌に保持・固定される難易度を計量する尺度となる分配係数値が種々の環境因子によってどの様に変化するかを、放射性核種がイオン状で存在する場合と非イオン状で存在する場合とについて検討する。ついで、帯水層模型地層を作製し、同地層における放射性核種の移動を長期間にわたり追跡して、第2章で紹介する井上の理論が実験結果を解釈する有効な理論であることを示す。さらに、通気層模型地層を作製し、同地層における放射性核種の移動を把握して、第2章で提案する通気層における核種移動予測方法の適用可能性を検証する。

第4章では、第2章、第3章の成果を利用して第2および第3の課題について検討する。第4章は本研究の主要部を構成する。まず、放射性物質の環境中での生態学的な移行経路に注目し、第2章、第3章の成果を利用して、廃棄物を地中処分することによって最終的に人が受けるとされる放射線障害の程度を推定・評価する手法（安全性の評価手法）を提案する。提案した安全性の評価手法を内外の放射性廃棄物地中処分場・陸地保管施設に適用し、それぞれの立地特性を評価する。廃棄物地中処分場の立地に好ましい条件を感度解析の手法を用いて定量的に検討し、処分場の立地条件を優先されるべき順位と共に明らかにする。当該場所が安全性の観点からみて廃棄物処分場の立地にどの程度望ましいかを評価するための簡便法（評価凶表による方法、近似計算による方法）を提案する。さらに、安全性を確保するために最も望ましい放射性廃棄物地中処分場の立地選定法について検討し、電子計算機を用いて処分場を最適立地させる方法と立地選定例を示す。

第5章では、第4の課題について検討する。すなわち、第4章で選定された処分場に放射性廃棄物を地中処分する場合を想定し、処分した廃棄物に起源を有する放射性物質の環境中での移動を検知するためのモニタリングのあり方について検討すると共に、モニタリング井戸の配置・設計の方法について検討しモニタリング井戸の合理的な配置例を示す。

最後に第6章では、本研究で得られた成果を整理・要約して示すと共に、今後解決すべき問題点を整理する。

本研究では、処分の対象となる廃棄物を原子力発電所から発生する放射性固体廃棄物に限る。廃棄

物の放射能レベルや、固化剤、容器等は限定しないことにする。廃棄物の管理政策からすれば、廃棄物を保管（貯蔵）するか、処分するかは極めて大きな差異であるが、放射性物質が環境中に漏出するという観点からみれば、漏出量あるいは漏出率の大きさが異なるだけである。放射性物質が環境中に漏出する可能性があるという点で、両者を区別する必要はない。本研究では、最終処分と陸上での保管を併せて研究対象とし、便宜上これを地中処分と呼ぶことにする。本研究では廃棄物を陸上で処分することを前提にする。本研究によって得られる結論は原子力発電所以外から発生する放射性廃棄物、例えば核燃料再処理廃棄物、および重金属等の有害物質、有毒物質等を含む非放射性廃棄物の地中処分問題にも有効に適用することができる。

参 考 文 献

- (1) 酒井忠二三：新エネルギー開発の方向，原子力工業，20(2)，17～20，(1974)
- (2) 鈴木 岑二：4,900万kW開発計画の背景，原子力工業，21(12)，9～14，(1975)
- (3) 大友 哲宏：核燃料サイクル上の問題点，原子力工業，21(12)，26～33，(1975)
- (4) 山田 昭：原子力発電の経済問題，原子力工業，21(12)，21～25，(1975)
- (5) 原子力工業編集部：急騰する原子力発電単価，原子力工業，21(8)，2～3，(1975)
- (6) U.S. AEC: Reactor Safety Study (Draft), WASH-1400, (1974)
- (7) 都甲 泰正：安全評価と確率論，原子力工業，20(3)，24～28，(1974)
- (8) 井上 頼輝：放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究，京都大学学位論文，(1970)
- (9) 久米三四郎：綱渡り原発技術を支える思想，技術と人間，No 10，pp. 55～63，(1974)
- (10) 全国原子力科学技術者連合：原子力開発と公害問題，公害研究，2(1)，13～23，(1972)
- (11) 渡辺 昂：日本における電力利用の現状と将来，原子力発電問題シンポジウム(水戸)報告集，pp. 125～135，(1974)
- (12) 村田 浩：変更された原子力発電長期計画，原子力工業，21(10)，13～16，(1974)
- (13) 毎日新聞，昭和50年12月26日(朝刊)
- (14) 毎日新聞，昭和51年5月5日(朝刊)
- (15) 通産省・総合エネルギー調査会：昭和50年代のエネルギー — 安定供給のための選択 — 通産省，(1975)
- (16) 原子力工業編集部：きびしい原発開発の現状，原子力工業，21(9)，5，(1975)
- (17) 放射性廃棄物処理処分検討会：同検討会報告書，(1972) 実業公報社
- (18) 付録-1 参照
- (19) Schmaltz, B.L.: Injection of gas into the lithosphere at the National Reactor Testing Station, IDO-12069, TID-4500, (1969)
- (20) Merritt, W.F. and Mawson, D.A.: Retention of radionuclides deposited in the Chalk River Nuclear Laboratories waste management areas, AECL-4510, (1973)
- (21) Maswon, C.A.: Consequences of radioactive disposals into the ground, Progress in Nuclear Energy Series 12, Vol. 2, pp.461-479, (1969). Pergamon Press
- (22) 原子力安全研究協会：固体廃棄物処理処分専門委員会昭和49年度成果報告書，(1975)
- (23) Robertson, J.B.: Digital modeling of radioactive and chemical waste transport in the Snake river plain aquifer at the NRTS, Idaho, IDO-22054, UC-70, (1974)
- (24) Brown, D.J.: Migration characteristics of radionuclides through sediments underlying the Hanford reservation, Proc.

of Symp., Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/16, pp.215-225,
(1967)

- (25) Merritt, W.J. and Parsons, P.J.: The safe burial of high-level fission product solutions incorporated into glass, Health Physics, Vol.10, pp.655-664, (1964)
- (26) The Union of Concerned Scientists:ウエストバレイ再処理工場の放射能公害, 原子力発電の安全性, pp.196~208, (1975), 岩波書店
- (27) Meyer, G.L.: Preliminary data on the occurrence of trans-uranium nuclides in the environment at the radioactive waste burial site, Maxey Flats, Kentucky, Proc. of a symp., San Francisco, IAEA/ERDA, (1975)
- (28) Belter, W.G.: Recent developments in the United States low-level radioactive waste management program--A preview of the 1970s, Proc. of a symp., Vienna, IAEA/ENEA, SM-137/61, pp.155-182, (1970)
- (29) ENEA: 西ヨーロッパにおける放射性廃棄物管理の実際
NSRA-memo No.19, (1972), 原子力安全研究協会訳
- (30) 石原 健彦:最近の放射性廃棄物処理処分の動き, 原子力工業, 20(1), 9~15, (1974)
- (31) 原子力安全研究協会:放射性廃液の海洋放出調査特別委員会5ヶ年研究成果報告書, (1972)
- (32) ENEA: 大西洋における放射性廃棄物の海洋投棄に関する報告,
NSRA-memo, No.10, (1969), 原子力安全研究協会訳
- (33) Issacs, J.D. et.al.: Disposal of low-level radioactive waste into Pacific coastal waters, NAS-NRC Publ. No.985, (1958)
- (34) 原子力安全研究協会:固体廃棄物処理処分専門委員会中間報告書, 原安協報告-15, (1969)
- (35) National Academy of Science: Considerations on the disposal of radioactive wastes from nuclear powered ships, NAS-NRC Publ. No.658, (1959)
- (36) 井上頼輝・森澤真輔:放射性廃棄物の宇宙処分, 原子力工業, 21(3), 31~41, (1975)
- (37) Platt, A.M. and Ramsey, R.W.: Long-term waste management method, Proc. of a Symp., Paris, OECD, pp.409-429, (1972)
- (38) Hyland, R.E. et.al.: Study of extraterrestrial disposal of radioactive wastes (Part III), NASA-TM-X-68216, (1973)
- (39) Zimmerman, A.V. et.al.: Summary report of space transportation and destination considerations for extraterrestrial disposal of radioactive wastes, NASA-TM-X-68211, (1973)
- (40) Mackay, J.S.: An evaluation of some special techniques for nuclear waste disposal in space, NASA-TM-X-62272, (1973)

- (41) Steinberg, M. et.al.: Neutron burning of long-lived fission products for waste disposal, BNL-6558, (1964)
- (42) Gregory, M.V. and, Steinberg, M.: A nuclear transformation system for disposal of long-lived fission product waste in an expanding nuclear economy, BNL-11915, (1967)
- (43) 核分裂生成物等総合対策懇談会報告書：放射能クロードシステムの構想, 日本原子力産業会議, (1973)
- (44) 道家 忠義：加速器による核分裂生成物の消滅処理, 「原子力発電の安全性」, pp. 129~136, (1975), 岩波書店
- (45) USAEC: High level radioactive waste management alternatives, WASH-1297, (1974)
- (46) Zeller, E.J. et.al.: A proposal for the establishment of a permanent international high-level waste depository in antarctic, Proc. of a symp., Paris, OECD, pp. 431-446, (1972)
- (47) 原子力安全研究協会：放射性固体廃棄物調査グループ報告書, 原安協報告 - 28, (1971)
- (48) Kenney, A.W. and Michell, N.T.: United Kingdom waste-management policy, Proc. of a symp., Vienna, IAEA/ENEA, SM-137/62, pp.69-90, (1970)
- (49) Enders, J.W.: Solid radioactive waste disposal at the LASL, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-93/3, pp.17-36, (1967)
- (50) Marter, W.L.: Ground waste disposal practices at the SRP, ibid, SM-93/7, pp.95-108, (1967)
- (51) McClain, W.C.: Hydraulic fracturing as a waste disposal method, ibid, SM-93/10, pp.135-149, (1967)
- (52) Beard, S.J. et.al.: Waste disposal into the ground at Hanford, ibid, SM-93/9, pp.123-134, (1967)
- (53) Lennemann, W.L.: USAEC interim radioactive waste burial program, ibid, SM-93/20, pp.261-300, (1967)
- (54) Lohse, G.E. et.al.: Preventing activity release at the ICPP, Proc. of a symp., Vienna, IAEA/ENEA, SM-137/46, pp.411-418, (1970)
- (55) Emelity, L.A. et.al.: Replacement of an old treatment plant - a design based on experience, ibid, SM-137/47, pp.609-630, (1970)
- (56) Mawson, C.A. et.al.: Canadian experiences with a national waste management facility, ibid, SM-137/4, pp. 183-194, (1970)

- (57) Merritt, W.F. et.al.: Experiences with ground disposal at Chalk River, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-93/6, pp.79-94, (1967)
- (58) Barete, M.V. et.al.: Assessment of the various factors governing the siting of a radioactive waste burial ground for the Mexican NNEC, *ibid*, SM-93/26, pp.367-382, (1967)
- (59) Howells, H.: Trench disposal of solid radioactive waste from the Windscale and Calder Works of the UKAEA, *ibid*, SM-93/2, pp.3-16, (1967)
- (60) Burns, R.H. et.al.: Harwell experiences in waste management, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-137/7, pp.419-432, (1970)
- (61) West, P.J.: Operational experiences in the handling, treatment and disposal of radioactive wastes at a R & D establishment, *ibid*, SM-137/8, pp.235-245, (1970)
- (62) Neset, K.M.: Development in the treatment and disposal of low and intermediate level wastes at the Institute for Atomic Energy, Norway, *ibid*, SM-137/60, pp.45-56, (1970)
- (63) 電気事業連合会：欧州各国における放射性廃棄物の管理，（1973）
- (64) Baas, J.L.: Management of low and intermediate level solid radioactive waste in the Netherlands, Proc. of a symp., Vienna, IAEA/ENEA, SM-137/33, pp.115-124, (1970)
- (65) Voorde, N.V. et.al.: Low and intermediate level radioactive waste management in Belgium, in particular at Mol, *ibid*, SM-137/53, pp.433-459, (1970)
- (66) Aurand, K. et.al.: Management of low and intermediate level radioactive liquid and solid wastes in the Federal Republic of Germany, *ibid*, SM-137/11, pp.101-113, (1970)
- (67) Krause, H. et.al.: Project for storing radioactive wastes in a salt cavity, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-93/35, pp.479-494, (1967)
- (68) Sousselier, Y. et.al.: Politique Francaise de Gestion des Dechets Radioactifs de Basse Activite et Dactivite Intermediate, Proc. of a symp., Vienna, IAEA/ENEA, SM-137/63, pp.9-21, (1970)
- (69) Iranzo, E. et.al.: Disposal of low and intermediate level solid radioactive wastes, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-93/5, pp.61-78, (1967)

- (70) Fontaine, G.: Ground disposal methods for radioactive solid wastes at the ISPRA establishment of EURATOM, *ibid*, SM-93/8, pp.109-121, (1967)
- (71) Oszuszy, E.J.P. et.al.: Future management of radioactive wastes in Austria, Proc. of a symp., Vienna, IAEA/ENEA, SM-137/52, pp.213-224, (1970)
- (72) Dlouhy, Z.: Storage facility for the centralized radioactive waste in the Chechoslovak Socialist Republic, Proc. of a symp., Vienna, SM-93/1, pp.49-60, (1967)
- (73) Rakov, M.N.: Burial in the ground of radioactive wastes incorporated in concrete, *ibid*, SM-93/30, pp.409-420, (1967)
- (74) Bagrezov, C.N.: Experience with the use of a pilot industrial testing ground for the disposal of liquid radioactive wastes into deep formations, *ibid*, SM-93/42, pp.577-590, (1967)
- (75) Kolychev, B.S. et.al.: Treatment and burial of low and intermediate level radioactive wastes in the USSR, Proc. of a symp., Vienna, IAEA/ENEA, SM-137/64, pp.27-43, (1970)
- (76) Spitsyn, V.I. et.al.: Physical and chemical criteria for the disposal of liquid radioactive waste into various geological formations, *ibid*, SM-137/75, pp.601-608, (1970)
- (77) ソ連問題研究会：ソ連邦における原子力安全環境対策の現状, (1975)
- (78) Godse, V.B. et.al.: Characterization of Trombay soils for disposal of radioactive waste, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-93/21, pp.301-317, (1967)
- (79) Cacho, C.: Private communication (1974)
- (80) Cairns, R.C.: Private communication (1974)
- (81) 阪田貞弘：廃棄物処理開発, 原子力工業, 19(4), 23~25, (1973)
- (82) ICRP: 国際放射線防護委員会勧告, ICRP Publ. No.1, (1958)
日本アイソトープ協会訳
- (83) ICRP: 国際放射線防護委員会勧告, ICRP Publ. No.9, (1965),
日本アイソトープ協会訳
- (84) IAEA: Standarization of radioactive wastes categories, IAEA technical report series No.101, STI/DOC-10/101, (1970)
- (85) Freke, A.M.: Some aspects of public health hazard associated with the storage or disposal of glasses incorporating highly active fission product wastes, Health Physics, Vol.12, pp.1077-1086, (1966)

- (86) 岩井重久, 寺島 泰: 高放射性廃液の固化処理, 水処理技術, 4(10), 1~13, (1963)
- (87) Wheeler, B.R. et.al.: Storage of radioactive solids in underground facilities.--Current ICPP practices and future concepts, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-93/31, pp.421-440, (1967)
- (88) USAEC: Final program report, AEC-Elk River Reactor, United Power Assoc., Elk River, COO-651-93, (1974)
- (89) Parsons, P.J.: International symposium on the disposal of radioactive wastes into the ground, Nuclear Safety, 9(10). pp.
- (90) Clebsch, A. and Baltz, E.H.: Progress in the United States of America toward deep-well disposal of liquid and gaseous radioactive wastes, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-93/43, pp.591-605, (1967)
- (91) Hild, W. and Krause, H.: Deep-well disposal of tritium containing liquid effluents, Proc. of a symp., Paris, IAEA/NEA, (1972)
- (92) Watson, G.M.: Environmental monitoring program at the AAEC research establishment, Lucas Heights, Proc. of a symp., Geneva, UN/IAEA, A/Conf. 49/P/800, pp.341-353, (1972)
- (93) King, L.G.: Mathematical model for underground discharge of radioactive gases, BNWL-SA-1152, (1967)
- (94) 楠城 力: 地下設置軽水炉の事故における放射性気体の地中輸送, 京都大学原子エネルギー研究所彙報, No 48, pp. 54, (1975)
- (95) Krause, H.: Disposal of radioactive wastes into deep geological formations, Atomic Energy Review, 7(1), 47-70, (1969)
- (96) Krause, H. et.al.: Experimental storage of radioactive waste in the Asse II salt mine, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-93/38, pp.519-532, (1967)
- (97) 日本原子力研究所: 東海研究所における放射性廃棄物処理関係設備の概要, JAERI-memo 4049, (1969)
- (98) 原子力委員会放射性廃棄物対策技術専門部会: 放射性廃棄物対策に関する研究開発計画(中間報告), (1976)
- (99) 原子力委員会: 放射性廃棄物処分小委員会報告, (1964)
- (100) 放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律, (1968)
- (101) 原子力委員会環境安全専門部会: 放射性固体廃棄物分科会報告書, (1973)

第2章 放射性核種の地中移動に関する理論的研究

2.1 概 説

放射性廃棄物を地中処分する場合には、環境中に漏出した放射性物質がどのような生態学的連関を経て、再び人間の生活環境に戻り、人体に摂取されるようになるかを把握することが、まず第1に必要なことになる。従来より、放射性物質の地中での移動を論ずる理論は、地層を構成する土壤の物理化学的、水理地質学的性質が複雑であることにより、あまり体系的に発展させられてきたとはいえない。ここではまず、放射性物質の地中での挙動を記述する上で重要な従来の諸理論を整理する。ついで、放射性核種の通気層での移動を記述する基礎式を提案する。

2.2 放射性核種の地下水中での存在状態

放射性核種の環境中での挙動を論ずる従来の理論のほとんどは、放射性核種の環境中での存在形態が不変であることを暗黙の内に仮定している。特に、放射性核種の地中での移動を論ずる場合には、核種がイオン状で存在すると仮定することが多い。⁽¹⁾ この仮定は多くの場合について、妥当であることが実験的に確かめられつつあるが、同時にこの仮定が妥当でない事例も報告されている。しかも、放射性核種が非イオン状で存在する場合には、地中での移動速度がイオン状で存在する場合よりも速くなることが実験的に確かめられつつある。⁽²⁾ 本研究は、非イオン状の放射性核種の地中移動を論ずる基礎理論を展開することを主な目的とはしていないので、ここでは非イオン状の核種の地中移動特性がイオン状の核種の移動特性とどの様に異なるかを提示するにとどめ、併せて核種の存在状態を予測する方法の現状について紹介する。⁹⁰Yを例として、非イオン状⁹⁰Yの地中移動特性について実験的に検討した結果については第3章で述べる。

放射性核種の地下水と土壤との間での分配に関与する機構には、イオン交換、物理吸着、化学反応、混晶の形成、結晶構造中への侵入等種々があり、実環境中でこれらのうちのどの機構が支配的であるかは、核種の存在形態と深い関係がある。それ故、放射性核種の環境中での存在形態の差異はその核種の環境中での挙動特性の差異となって現れる。図-2.1は同じ条件で調整した砂カラムを通過する各々イオン状⁹⁰Yおよび非イオン状⁹⁰Yの流出曲線を示している。イオン状の⁹⁰Yが砂に吸着されてほとんどが砂カラムから流出しないのに対し、非イオン状⁹⁰Yは砂カラム中での移動速度が極めて大きい。一方、図-2.2⁽³⁾は、同じく砂カラムに⁶⁵Znを含む地下水を通

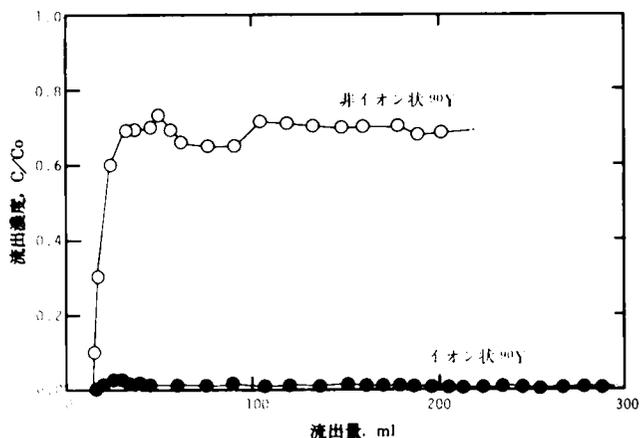


図-2.1 イオン状および非イオン状⁹⁰Yの砂カラム流出曲線

水して、 ^{65}Zn の流出曲線を、地下水の物理化学的性質を変えて実測したものである。すなわち、図中の曲線1は地下水中の Ca 濃度が未飽和で砂中の炭酸カルシウムが水中へ移行する傾向にある場合の

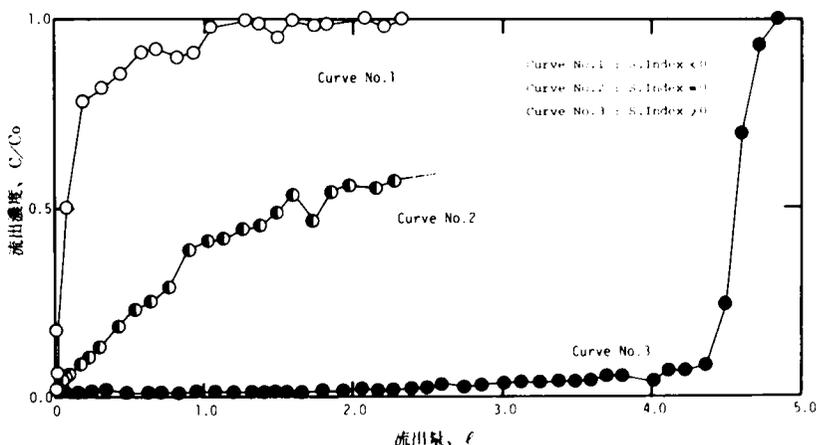


図-2.2 ^{65}Zn の土壌カラム流出曲線

^{65}Zn の流出曲線を、曲線2は地下水の Ca 濃度がほぼ飽和濃度に等しい場合、また曲線3は地下水中の Ca 濃度が過飽和状態にあり、水中の Ca が炭酸カルシウムとして沈降する傾向に保った後、通水量が4.4 ℓ を越える付近で Ca 濃度が未飽和状態にある地下水を通水した場合の ^{65}Zn の流出曲線である。図-2.2では、図-2.1の ^{90}Y と異なり、当該放射性核種自身の存在形態が変わったのではなく、核種の輸送媒体である地下水の物理化学的性質が変化したのであるが(^{65}Zn の存在状態がどのように変化したかは確認されていない)、やはり放射性核種の移動特性の著しい変化が認められる。本研究では、実験データを収集することによって、従来の理論ではとり扱い得ないようなこれらの現象を個々の核種における特例としてその移動量を予測するという経験的手法を採用するにとどめる。幸い、現在、天然の地下水中で非イオン状態で存在するとの疑いが持たれている放射性核種は半減期の短いものが多いので、放射性物質が環境中に漏出した場合の放射線学的な安全性を評価する場合には、この経験的手法で十分に目的を達成することができる。

放射性核種の水中での存在状態および存在形態を理論的に推定しようとする研究は現在では、主として分析化学者等によって進められており、その成果も多く発表されている。(4)~(8)ただ、これらの研究成果は、なお実際の環境水中での核種の存在状態を予測しうる程度にまでは進んでいない。図-2.3(9)は純水中に投入された Sr がどのような存在形態で存在するのが安定であるかを、熱力学データを用いて算出し、酸化還元電位 E_h と水素イオン濃度 pH とをパラメータにして図示したものである。同図によると Sr は中性付近の純水中では2価の陽イオンとして存在するのが熱力学的に安定であることが解る。このことは天然の地下水を用いて ^{90}Sr の存在状態を調べた結果ともほぼ一致している。(1)現在、種々の分析手法(10)を用いて環境中での放射性核種の存在形態および存在状態を実験的に把握し、理論的予測の信頼性を高める努力が払われている。(11),(12)

本研究では、特にことわらない限り、イオン状の放射性核種について検討する。

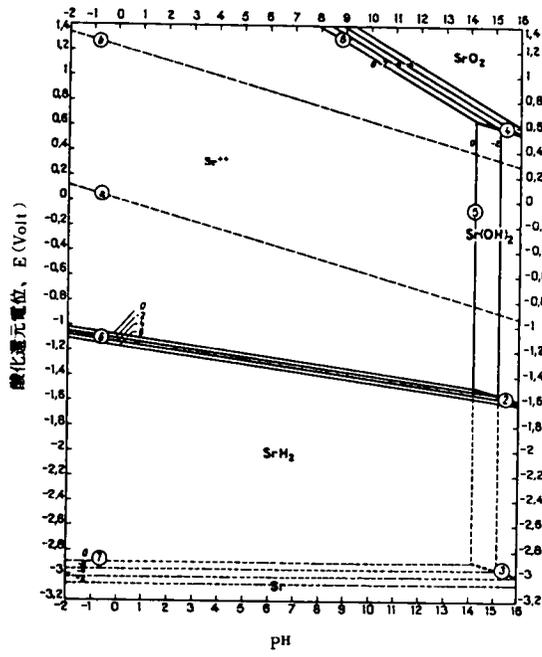


図-2.3 Sr の電位-pH 平衡図 ($H_2O - Sr$ 系: 25 °C)
(文献(9)より引用)

2.3 放射性核種の交換平衡

放射性核種の地下水と土壌との間の分配現象について考える。土壌は環境中では、極まれには正に帯電することもあるが、多くは負に帯電しており、それ故陽イオン交換材としての性質を有する。地下水層中で土壌と地下水とが作る系は、構成成分が多くしかも不均質であるため、系内での放射性核種の挙動を正確に記述する理論は現在のところ報告されていない。分配現象の理論的取り扱い、人工的に合成したイオン交換樹脂について展開された理論を参考にして、その基本的考え方を応用・適用している段階にある。ここでは、まずイオン交換樹脂によるイオンの交換吸着反応について厳密に展開された理論を紹介し、ついでその理論の地下水系への適用の現状を紹介する。

2.3.1 イオン交換の熱力学^{(13)*}

溶液中のイオンの溶液とイオン交換体との間の交換現象は、熱力学的には、イオン交換体内の特殊な電解質溶液と、それに接する外部溶液との間の交換平衡現象としてとり扱うことができる。この平衡関係の理論は合成イオン交換樹脂の場合、熱力学的に厳密に取り扱うことが比較的容易であるが、その理論を天然の無機陽イオン交換体である土壌にあてはめて、現象を定量的に解明することは不可能に近い。しかしながら土壌もまた、イオン交換体としての性質を有するから、この理論を用いて土壌と地下水との間のイオン交換平衡を定性的に理解することは可能である。

今、 A^{a+} 型のイオン交換体を、電解質 $B^{b+} \cdot X_b$ を含む溶液に浸すと、次式で表わされる平衡が成立する。



イオン価数が各々 a 、 b の陽イオン A^{a+} と B^{b+} との間の選択系数 (交換平衡定数) K_A^B を次式(2-2)で定義すると (但し、 q_A, q_B ; 交換体内での A 、 B イオンのモル濃度、 C_A, C_B ; 外部溶液中での A 、 B イオンのモル濃度)、

$$K_A^B \equiv \frac{(q_B)^a \cdot (C_A)^b}{(q_A)^b \cdot (C_B)^a} \quad \dots\dots\dots (2-2)$$

* 本節で紹介するイオン交換の熱力学は成田等⁽¹³⁾の行なった理論展開を簡略化したものである。

K_A^B は、 A, B 両イオンの交換体内での活動度係数、 $\bar{\gamma}_A, \bar{\gamma}_B$ 、外部溶液中での活動度係数、 γ_A, γ_B および交換体内での A, B 両イオンの部分分子容 v_A, v_B を用いて

$$\ln K_A^B = \ln \frac{(\bar{\gamma}_A)^b \cdot (\gamma_B)^a}{(\bar{\gamma}_B)^a \cdot (\gamma_A)^b} + \frac{\pi}{RT} (b\bar{v}_A - a\bar{v}_B) \quad \dots\dots\dots (2-3)$$

と書くことができる。但し R は気体定数、 T は絶対温度、 π は温度および外部溶液にかかる圧力が一定の場合に、イオン交換体の体積のみの関数となり、圧力の単位を有する量である。 π はまた膨潤圧と呼ばれることがある。

今、イオン A^{a+} とイオン B^{b+} との分離定数 S_A^B を次式(2-4)で定義する。

$$S_A^B = \frac{q_B \cdot C_A}{q_A \cdot C_B} \quad \dots\dots\dots (2-4)$$

イオン A^{a+} 、イオン B^{b+} の分配係数 $k_{d,A^{a+}}$ 、 $k_{d,B^{b+}}$ を次式で定義すれば、

$$k_{d,A^{a+}} = \frac{q_A}{C_A}, \quad k_{d,B^{b+}} = \frac{q_B}{C_B} \quad \dots\dots\dots (2-5)$$

分離係数 S_A^B と分配係数 k_d とは次のような関係にある。即ち、

$$S_A^B = \frac{q_B \cdot C_A}{q_A \cdot C_B} = \frac{k_{d,B^{b+}}}{k_{d,A^{a+}}} \quad \dots\dots\dots (2-6)$$

となる。上式より明らかなように、 S_A^B は容易に実測できる量であり、 $S_A^B > 1$ は B^{b+} イオンが A^{a+} イオンよりよく交換吸着されることを意味し、また $S_A^B < 1$ は A^{a+} イオンが B^{b+} イオンよりよく交換吸着されることを意味する。式(2-2)、式(2-3)を用いると、 S_A^B は次式のように変形できる。

$$\ln S_A^B = \left(1 - \frac{a}{b}\right) \ln \frac{q_B}{C_B} + \frac{1}{b} \ln \frac{(\bar{\gamma}_A)^b \cdot (\gamma_B)^a}{(\bar{\gamma}_B)^a \cdot (\gamma_A)^b} + \frac{1}{b} \frac{\pi}{RT} (b\bar{v}_A - a\bar{v}_B) \quad \dots\dots\dots (2-7A)$$

$$= \left(1 - \frac{a}{b}\right) \ln k_{d,B}^d + \frac{1}{b} \ln \frac{(\bar{\gamma}_A)^b \cdot (\gamma_B)^a}{(\bar{\gamma}_B)^a \cdot (\gamma_A)^b} + \frac{1}{b} \frac{\pi}{RT} (b\bar{v}_A - a\bar{v}_B) \quad \dots\dots\dots (2-7B)$$

$$= \left(\frac{b}{a} - 1\right) \ln k_{d,A}^d + \frac{1}{a} \ln \frac{(\bar{\gamma}_A)^b \cdot (\gamma_B)^a}{(\bar{\gamma}_B)^a \cdot (\gamma_A)^b} + \frac{1}{a} \frac{\pi}{RT} (b\bar{v}_A - a\bar{v}_B)$$

A, B 両イオンのイオン価が等しい場合 ($a = b$) には、式(2-7)は

$$\ln S_A^B = \ln \frac{(\bar{\gamma}_A) \cdot (\gamma_B)}{(\bar{\gamma}_B) \cdot (\gamma_A)} + \frac{\pi}{RT} (\bar{v}_A - \bar{v}_B) \quad \dots\dots\dots (2-8)$$

となり、イオンの交換吸着性を決定するのは活動度係数の差および交換体内でのイオンの部分分子容の差だけになる。従って、活動度係数の差が小さい場合には、交換体内でのイオン部分分子容が小さい程交換吸着され易くなる。また式(2-8)は π が大きい程分離係数が大きくなることを示しているが、これは膨潤圧の大きなイオン交換体程選択性が大きくなることを意味している。

A, B イオンのイオン価が異なる場合 ($b > a$) で、外部溶液中の主成分が A^{a+} イオン、即ち $C_A \gg C_B$ の場合には式 (2-7) は、

$$\ln S_A^B = \left(\frac{b}{a} - 1\right) \ln k_{d,A} + \frac{1}{a} \ln \frac{(\bar{r}_A)^b \cdot (\bar{r}_B)^a}{(\bar{r}_B)^a \cdot (\bar{r}_A)^b} + \frac{1}{a} \frac{\pi}{RT} (b\bar{v}_A - a\bar{v}_B)$$

となる。ところが一般に、上式右辺第二項、第三項は第一項に比べて小さいから近似的に式 (2-9) とかくことができる。

$$\ln S_A^B \cong \left(\frac{b}{a} - 1\right) \ln k_{d,A} = \left(\frac{b}{a} - 1\right) (\ln q_A - \ln C_A) \quad \dots\dots\dots (2-9)$$

式 (2-9) より次のような定性的な推論をすることができる。即ち、外部溶液の主成分が A イオンであるとみなせる場合は、交換体内の主成分も A イオンとなる。即ち、 $q_A = q_\infty$ (q_∞ は交換体のイオン交換容量) と見なすことができるから、 $k_{d,A} > 1$ のとき式 (2-9) より $S_A^B > 1$ となりイオン価数の大きい B イオンの方が交換吸着されやすくなり、その程度はイオン価数の差が大きい程また $k_{d,A}$ が大きい程著しくなる。

$k_{d,A} \cong 1$ のとき、即ち交換体内と外部溶液中での主成分 A イオンの濃度とがほぼ等しい場合、 S_A^B もまた 1 に近くなり、イオンの交換吸着の選択性は式 (2-7 B) の第二項、第三項によって定まる。更に $k_{d,A} < 1$ のときには、 $S_A^B < 1$ となる場合が生じ、イオン価の小さい A イオンの方が交換吸着され易くなる。

外部溶液中の主成分が B^{b+} イオンである場合 (但し $b > a$) にも同様に式 (2-7 A) より、

$$\ln S_A^B \cong \left(1 - \frac{a}{b}\right) \ln k_{d,B} \quad \dots\dots\dots (2-10)$$

となる。従って、 $k_{d,B} > 1$ の場合には、主成分でイオン価の大きい B^{b+} イオンの交換吸着性が強くなり、 $k_{d,B} \cong 1$ の場合は式 (2-7A) の第二項、第三項によって交換吸着性が定まり、 $k_{d,B} < 1$ の場合には、イオン価の小さい A^{a+} イオンの交換吸着性の方が強くなることがある。土壌と地下水とが作る系においては、通常は A, B 両イオンの分配係数 $k_{d,A}$ 、 $k_{d,B}$ は 1 よりも大きな値をもつ場合が多い。すなわち土壌に濃縮される場合が多い。それ故、以上の推論より、イオン価数の大きいイオン程またイオン価数が等しい場合には部分分子容、従ってイオン半径が小さいイオン程、土壌に強く交換吸着されることになる。このような一般原則が土壌と地下水とが作る系において完全に成立するとは限らないが、このような原則は放射性核種の地中での移動の難易の順位を推定する場合に有用である。

2.3.2 放射性核種の分配係数值

(1) 分配係数の定義

前節、式 (2-5) で示したように、放射性核種の分配係数 kd は、地下水中の放射性核種濃度 C と土壌中の放射性核種濃度 q とが平衡状態にある場合の両者の比の値 q/C として定義される。放射性核種が土壌に固定される機構がイオン交換反応であるとすれば、その反応式は式 (2-1) で表わされるので、質量作用の法則による交換平衡定数 K_A^B が式 (2-2) で定められる。式 (2-2) より、注目する放射性核種 A の分配係数 kd_A は、

$$kd_A = K_B^A \frac{1}{b} \cdot \left(\frac{q_B}{C_B} \right)^{\frac{a}{b}} = K_B^A \frac{1}{b} \cdot kd_B^{\frac{a}{b}} \quad \dots\dots\dots (2-11)$$

となる。ここに、 kd_B は、地下水中に存在する陽イオンのうちAイオンの土壌の交換吸着反応を考える上で最も重要なイオンBの分配係数である。地下水中にさらに多くのイオンB, C, D, ……があり、これらのイオンとAイオンとの交換反応が互いに独立であるとみなせる場合には、

$$kd_A = (K_B^A \cdot K_C^A \cdot K_D^A \cdot \dots) \frac{1}{b+c+d+\dots} \left\{ \frac{q_B \cdot q_C \cdot q_D \dots}{C_B \cdot C_C \cdot C_D \dots} \right\}^{\frac{a}{b+c+d+\dots}} \quad \dots\dots\dots (2-12)$$

となる。

ただし、現実には放射性核種Aの分配係数に影響を与える共存陽イオンとしては数種類のイオン(例えば、 Ca^{++} , Mg^{++} , H^+ イオン等)を考えれば充分である場合が多い。

(2) 分配係数値の測定方法

分配係数の測定方法には、バッチ法とカラム法とがある。バッチ法はビーカー内に土壌と放射性核種を含む地下水とを投入し、核種の交換反応が平衡に達した後、土壌および水中の核種濃度を測定して式(2-5)によって分配係数値を得る方法である。核種と土壌と地下水とが作る系内においては、常に放射性核種が土壌とのイオン交換反応のみによって水中から除去されるとは限らない。例えば、核種が水中に存在する種々の陰イオンと結合して難溶性の塩を作って沈澱したり、コロイド状になって土壌表面に吸着すること等が考えられる。したがって、バッチ法によって測定される分配係数値は、イオン交換樹脂について厳密に定義されイオン交換による分配のみを表わす分配係数値ではなく、多くの要因を包括したみかけの分配係数値である場合が多い。とりわけ、核種が難溶性の塩を形成して沈降する場合には、分配係数値は極めて大きくなる。このことは、放射性核種の分配係数値をイオン交換反応の理論を用いて推定・予測することには無理があることを意味する。

カラム法は、核種を含む地下水を土壌カラムに通水して得られる核種の流出曲線と水自身の流出曲線とが、後に述べるように通水量に関して相似である性質⁽¹⁴⁾を利用して分配係数値を定める方法である。すなわち、水および核種のカラム流出濃度が例えば流入濃度の50%となる通水量を各々 V_{water} , $V_{nuclide}$ とすると、用いる土壌カラムが飽和カラムであるか、不飽和カラムであるかによって各々式(2-13)、式(2-14)が成立し、同式から分配係数値を得ることができる。

$$\frac{V_{nuclide}}{V_{water}} = 1 + \frac{1-f}{f} \rho kd \quad \dots\dots\dots (2-13)$$

$$\frac{V_{nuclide}}{V_{water}} = 1 + \frac{1-f}{fS} \rho kd_u \quad \dots\dots\dots (2-14)$$

ここに、 f は土壌カラムの空隙率、 S は水による飽和度、 ρ は土壌の密度である。後に述べるように式(2-14)は、不飽和土壌カラム内の土壌水分が一様になった後に成立する式であるから、同式を用いて分配係数値を決定するためには、不飽和カラムに核種の水溶液を供給する前に必ず十分な時間、水のみを供給してカラム内の土壌水分の分布を一様にする必要がある。飽和度 S はカラムに供給する水の供給強度を変えることによって調節することができる。

カラム法によって測定される分配係数値とバッチ法で測定される分配係数値とが常に一致するとは限らない。放射性核種が土壌によって収着され難い、例えば非イオン状態で存在する場合には、土壌層による核種の補集を無視しうることから、カラム法によって測定した分配係数値がほぼゼロになるのに対し、バッチ法によって測定した分配係数値は非イオン状核種の沈降現象などを評価するためゼロにはならない。⁽¹⁾ このため、水田土壌や湖・沼の底泥などへの核種の移行を検討する場合のように、土壌層中を水が定常的に移動することがない系における核種の分配を論じる場合にはバッチ法による分配係数値を用い、一方、地下水層中における核種の地下水から土壌への移行を検討する場合のように、土壌層中を地下水が定常的に移動するような系での核種の分配を論じる場合にはカラム法による分配係数値を用いることが多い。

(3) 分配係数の工学的意味

核種および地下水の移動速度 v_{water} 、 v_{nuclide} を用いて式(2-13)を書き換えると、

$$\frac{v_{\text{water}}}{v_{\text{nuclide}}} = 1 + \frac{1-f}{f} \rho k d \quad \dots\dots\dots (2-15)$$

となる。 v_{water} 、 f 、 ρ は地層によって定まる定数であるから、放射性核種の地中移動速度は分配係数値によって定まることになる。式(2-15)の右辺を K_f とおき、例えば、放射性廃棄物の地中処分位置から、処分場の敷地境界までの核種の移動距離を L 、核種の処分量を M_0 、崩壊定数を λ とすると、敷地境界で人が地下水を飲用することによってうける潜在的内部被曝線量 D_k は、地中での拡散・希釈等の効果を無視すると、

$$D_k = k M_0 \exp[-\lambda L K_f / v_{\text{water}}] \quad \dots\dots\dots (2-16)$$

で与えられる。ただし k は核種量を被曝線量に換算するための換算係数である。

式(2-15)、式(2-16)より分配係数値が大きな核種ほど地中を移動する速度が遅くなり、これらの核種による潜在的内部被曝線量は同一地層においては核種に応じて λK_f の指数乗に比例して減少することがわかる。放射性廃棄物の地中処分法は、土壌のもつ交換吸着能を利用して放射性核種をその半減期に比べて十分に長い間地中に保持することにより安全性を確保する方法であるから、核種の地中での移動の難易度を表わす分配係数は、放射性廃棄物地中処分の放射線学的安全性を評価する場合に極めて重要な役割を果たす。

(4) 分配係数に関する従来の研究

放射性核種の分配係数値は、測定方法、核種、核種の存在状態、核種の濃度、地下水中の共存イオン、共存イオンの化学的安定性、土壌等々の影響をうけて変化する。ここでは、分配係数値とこれら種々の因子との関係を論じた報告を整理して示す。

① 共存イオンの影響

Cearlock 等⁽¹⁵⁾は地下水中に存在する多くの陽イオンと Sr の分配係数値との関係について実験し、つぎのような回帰式を得た。

$$k d_{Sr} = 3.56 - 0.23 C_{Ca} - 3.33 \times 10^{-3} C_K - 1.68 \times 10^{-3} C_{Na} (ml/g) \quad \dots\dots (2-17)$$

ここに、 C_{Ca} 、 C_K 、 C_{Na} は各々地下水中の Ca^{++} 、 K^+ 、 Na イオン濃度 (meq/l) である。ただし、

$2 < C_{Ca} < 5$ 。

彼等は、 S_r の分配係数值に影響を及ぼす共存イオンとしては Ca^{++} , Mg^{++} , Na^+ , K^+ , H^+ が重要でありマイクロイオンの影響は認められないと述べている。上式は、これらの共存マクロイオンの内特に Ca^{++} の影響が大きいことを示している。中性付近で用いた土壌（Ephrata 砂）は pH の影響をうけなかったことが報告されている。

Serne 等は^{(16),(17)} Ca^{++} , Na^+ , K^+ イオンによる ^{85}Sr の分配係数值についてさらに詳しく実験し、次のような重回帰式を報告している。

$$\begin{aligned}
 kd_{S_r} = & 14.60 - 0.11 C_{Ca} - 2.74 \times 10^{-2} C_K - 6.09 \times 10^{-2} C_{Na} \\
 & + 2.54 \times 10^{-3} C_{Ca} C_K + 1.08 \times 10^{-3} C_K C_{Na} + 5.7 \times 10^{-4} C_{Na} C_{Ca} \\
 & - 1 \times 10^{-5} C_{Ca} C_K C_{Na} \quad (ml/g) \quad \dots\dots\dots (2-18)
 \end{aligned}$$

ただし、 Ca^{++} , Na^+ , K^+ イオンの濃度は meq/l で与えられ、 $4 < C_{Ca} < 100$ 。式(2-17)による kd 値と式(2-18)による kd 値とは共存イオン濃度が同じであっても、試料土壌が異なるために一致はしないが、やはり分配係数值が共存イオン濃度の増加と共に減少すること、内でも Ca 濃度の影響が大きいこと、等は一致している。

水素イオン濃度(pH)による影響は、 pH の変化と共に問題とする放射性核種の安定な物理化学的存在状態が変わるだけでなく、土壌-地下水系の平衡関係が変化するため簡単には論ずることができない。筒井・西牧⁽¹⁸⁾は pH 0~2の強酸性状態での帯水層砂の分配係数值について実験し（地下水中の Ca 濃度は $0.6 meq/l$ ）。

$$kd_{S_r} = 1.2 \frac{q_{\infty}}{C_H} \quad (ml/g) \quad \dots\dots\dots (2-19)$$

ただし、 $0 < pH < 2$

なる関係を与えた。ここに q_{∞} は土の陽イオン交換容量（ $32 meq/g$ -soil）, C_H は地下水中の H^+ イオン濃度（ meq/ml ）である。一方、Watters 等⁽¹⁹⁾は pH 5~8の範囲で ^{210}Po の分配係数值について実験し、シルト質ロームについて次の回帰式を得た。

$$\ln kd_{P_o} = (-3.3 \pm 1.9) + (1.3 \pm 0.2) pH \quad \dots\dots\dots (2-20)$$

Watters 等は上式によって P_o の分配係数值の概略を予測しうることを報告している。

② 流速の影響

共存イオンが分配係数值におよぼす影響ほどにはそのメカニズムの解明は進んでいないが、地下水の移動速度も核種の分配係数值に影響があるとされている。Ahlgstrom等⁽²⁰⁾は放射性核種の土壌との相互作用は、共存イオン濃度等のマイクロな因子よりは、むしろマクロな因子に注目する方が、特に実地層での核種の挙動を予測する場合には実際的であるとして、つぎの回帰式、

$$kd_{S_r} = 3.8 \log K + 11.7 \quad (ml/g) \quad \dots\dots\dots (2-21)$$

ただし、 $0.13 < K < 80$

を報告している。ここに K は地下水層の透水係数 (ft/day) である。

2.4 放射性核種の地中移動に関する従来の理論

放射性核種の地中での移動を論ずる理論は、放射性物質の地層中での物質収支式と、反応式とを連立して解くことがその主な内容であるが、その理論的展開は研究者により異なったものになっている。1960年代およびそれ以前に提案された理論の多くは、複雑な基礎式を、対象とする現象の特性を考慮して、できる限り簡略化し、つまり考慮する環境パラメータの数、種類を制限することによって求める解を解析的、あるいは図解的に得ようとするものであった。それに対して、1960年代後半から現代にかけて電子計算機の発達・普及に伴って、より複雑な基礎式をも解きうるようになってきたため、核種の移動を論ずる理論もその適用範囲を広くするとともにますます精密の度を深くしている。(21)~(23) 特に、アメリカ合衆国においては、1969年に国家環境政策法が制定され各種事業に対する環境インパクト・ステートメントの作製が義務づけられて以来、放射性廃棄物の発生から環境中での挙動、人体による摂取に至る生態学的連関を総合的に定量化しようとの努力が進められ、その成果が報告されつつある。(24)~(30) このような動向を反映して、とりわけ最近では、核種の地中での移動に関係する多量のデータを統計的に処理し、必ずしも地中での移動機構を解明することなく、放射性核種の地中移動を予測しようとの試みも報告されている。(31),(32) システム工学の手法を駆使して、放射性廃棄物の処分に伴う影響を総合的に評価する試みにおいては、すでに報告された核種の環境中での挙動を論ずる理論が有効に利用されることが多いが、新しい基礎理論が提案されることは稀である。

ここでは、まず放射性核種の地中移動を論ずるために使われてきた諸理論の内、各々の特徴を端的に表わしていると思われる3つの理論、すなわち(1)主として人工のイオン交換樹脂を対象にして展開された理論、(2)理論的とり扱いを簡略化し、しかも多核種が存在する場合の核種の移動を図解的に得ることをめざしたSillenの図解法(Frontal Analysis)および(3)放射性核種の移動を核種の輸送媒体である地下水の運動と関連づけて説明する井上の理論、をとりあげて紹介する。従来より理論的取り扱いが複雑であるとの理由で研究が遅れていた、通気層(不飽和地層)における放射性核種の挙動を記述する理論については次節で提案する。

2.4.1 イオン交換塔の理論

地中に漏出した放射性核種は土壌によって交換吸着され、やがては自己崩壊によって減衰するが、地下水が流動している場合には、その一部が脱着・吸着をくり返してわずかであるが移動する。このような現象はイオン交換樹脂塔内で生じるイオン交換現象について詳細に研究されている。ここでは、これらの理論の内もっとも完成度が高いと思われるHiester and Vermeulen⁽³³⁾の理論について概説する。この理論は極めて精密で、イオン交換機構に関する考察を基にして理論を展開していくと、得られた理論がHiester and Vermeulenの理論を簡略化した特例となってしまう場合が少なくない。

Hiester and Vermeulen⁽³³⁾は次の3条件の下に理論を展開した。

- (1) 溶液の流れの方向は一様かつ一定であり、現象は1次元である。
- (2) 放射性核種の自己崩壊、拡散を無視する。

(3) 当該イオンAのイオン交換現象は共存するイオンの内、Bイオンとの反応のみで記述できる。
すなわち、生じる反応は2イオン間のイオン交換反応である。

Hiester and Vermeulen は2成分間のイオン交換反応を次式、



で表わし、この反応の律速式をA、B両イオンのイオン価が等しい場合 ($a = b$) について、次式で与えた。

$$\frac{dq_A}{dt} = k_{kin} \left\{ C_A (q_{\infty} - q_A) - \frac{1}{K} (C_0 - C_A) q_A \right\} \quad \dots\dots\dots (2-23)$$

- ここに、 C_0 : 溶液中の全陽イオン濃度 ($= C_A + C_B$)
- C_A : 溶液中の A^{a+} イオン濃度 ($= C_0 - C_B$)
- q_{∞} : 吸着剤の交換容量 ($= q_A + q_B$)
- q_A : 吸着剤中の A^{a+} イオン濃度 ($= q_{\infty} - q_B$)
- K : 交換平衡定数
- t : 時間のパラメータ

一方、注目するイオンAの物質収支式としては、次式を用いた。

$$-\left(\frac{\partial C_A}{\partial t}\right)_V = \rho \left(\frac{\partial q_A}{\partial t}\right)_l + f \left(\frac{\partial C_A}{\partial V}\right)_l \quad \dots\dots\dots (2-24)$$

- ここに、 l : イオン交換塔 (カラム) の容積
- f : 吸着層の空隙率
- ρ : 吸着剤の密度
- V : カラムに流入する液の積算量

式(2-23)、式(2-24)を次の境界条件および初期条件の下に、連立して解いて各々解(2-26)および式(2-27)を得た。但し、 v は溶液の容積速度である。

$$\begin{cases} S = K f l / v \text{ のとき } C_A / C_{A0} = 1 \\ t = 0 \text{ のとき } q_A / q_{\infty} = 0 \end{cases} \quad \dots\dots\dots (2-25)$$

$$\frac{C_A}{C_{A0}} = \frac{J(rs, t)}{J(rs, t) + \{1 - J(s, rt)\} \exp\{(r-1)(s-1)\}} \quad \dots\dots\dots (2-26)$$

$$\frac{q_A}{q_{\infty}} = \frac{1 - J(rs, t)}{J(rs, t) + \{1 - J(s, rt)\} \exp\{(r-1)(s-1)\}} \quad \dots\dots\dots (2-27)$$

ここに、 C_{A0} はAイオンの液相中での初期濃度(流入濃度)を表わし、 $J(x, y)$ はFurnasが誘導した関数で、次式で定義されている。

$$J(x, y) = 1 - \int_0^x e^{-y-\xi} I_0(2\sqrt{y\xi}) d\xi \quad \dots\dots\dots (2-28)$$

また r は交換平衡定数 K の逆数である。

解の式(2-26)、式(2-27)は Furnas 等の関数、式(2-28)を媒介として、ベッセル関数を被積分関数の形で含んでおり、その数値計算は極めて困難である。そこで通常は、 r, s をパラメータとする式(2-26)、式(2-27)の計算図表が用意されている。この理論は、理論展開が厳密である反面、簡単かつ迅速に実用的な解を得るためには不都合であるので、Hiester and Vermeulen は現象を種々に類型区分して解を近似化するとともに、 A, B 両イオン価数が等しくない場合 ($a \neq b$) についても考察している。

この理論はイオン交換樹脂塔でのイオンの流出曲線を予測する場合には、その予測精度は極めて高いことが知られている。しかしながら、最初に述べたように3つの仮定を設定しているために、極低濃度の放射性核種が地中を移動する現象を予測するのにこの理論を用いることには問題が多い。特に実地層にこの理論をそのまま適用することは不可能に近いと思われる。

2.4.2 Frontal Analysis

Hiester and Vermeulen の理論は、すでに述べたように、厳密には2種類のイオンのみが存在するイオン交換系において成立する。それ故、地下水層中に漏出した放射性核種と地層を構成する土壌との間のイオン交換現象のように多くのイオンが介在する系においては、同理論を適用することが、理論的厳密さから言えば不適切となる。ここでは、多くのイオンが共存する場合について展開された Sillen の Frontal Analysis^{(34)~(38)} について概説する。この解析法は複雑な理論計算によらず、実験によって得る基礎データから図解的にイオンの移動現象を把握することを目的にしている。

この理論は次の3つの仮定の下に展開されている。すなわち、

- (1) 吸着剤と液相中のイオンとの間にはいたるところで交換平衡が成立している。
- (2) 系内で生じる反応はイオン交換反応である。
- (3) 物質の拡散、放射性核種の自己崩壊は無視する。

Sillen は放射性物質の物質収支式として次式を用いた。

$$\left(\frac{\partial C_i}{\partial x}\right)_V + \left(\frac{\partial q_i}{\partial V}\right)_x = 0 \quad \dots\dots\dots (2-29)$$

ここに、 x : 吸着剤(土壌)の量

V : 通過する溶液(地下水)の積算量

C_i : 第 i イオン ($i = 1, 2, \dots, I$) の溶液中濃度

q_i : 第 i イオン ($i = 1, 2, \dots, I$) の吸着剤中濃度

上式を次の境界条件・初期条件

$$\begin{cases} V = 0 \text{ or } x = \infty \text{ のとき} & q_i = q_{i,\infty}, \quad C_i = C_{i,\infty} \\ x = 0 \text{ or } V = \infty \text{ のとき} & q_i = q_{i,0}, \quad C_i = C_{i,0} \end{cases} \quad \dots\dots\dots (2-30)$$

の下に解く。ここで独立変数 x, V の代りに

$$\varphi = \frac{C_0 V}{q_\infty x} \quad \dots\dots\dots (2-31)$$

を用いて、式(2-29)を変形・整理して、次の常微分方程式を得た。すなわち、

$$\frac{dC_i}{d\varphi} \left(\frac{C_0}{q_\infty} \frac{dq_i}{dC_i} - \varphi \right) = 0 \quad \dots\dots\dots (2-32)$$

故に、基礎式(2-29)の解として、次の2通りの解を得ることができる。ここに C_0 は溶液中の全てのイオン濃度の和、 q_∞ は吸着剤のイオン交換容量である。

$$\begin{cases} \varphi = \frac{C_0}{q_\infty} \frac{dq_i}{dC_i} = \frac{d(q_i/q_\infty)}{d(C_i/C_0)} & \dots\dots\dots (2-33) \\ C_i = \text{Const} & \dots\dots\dots (2-34) \end{cases}$$

式(2-33)で与えられる解は、第 i 番目のイオンの濃度変化が連続的に生じることを、また式(2-34)で与えられる解は、第 i 番目のイオンの濃度変化が階段状(不連続的)に生じることを示している。

Sillenは式(2-33)、式(2-34)の解のうちいずれが現実可能な解であるか、あるいはどのような場合にいずれの解が可能であるかを、各イオン毎に実測した吸着剤と溶液との間の交換平衡曲線の形によって識別している。SillenのFrontal analysisではHiester and Vermeulen⁽³³⁾他多くの理論⁽³⁹⁾によって用いられているような定式化された反応式を用いず、当該イオンの吸着剤と溶液との間の反応を交換平衡曲線で表わしている。土壌カラムに k イオンが吸着されており、ここに i イオンが流入してくる場合について考える。新しく系内に流入してくる i イオンの交換吸着性が、 k イオンの交換吸着性に優る場合(この場合、 i イオンの交換平衡曲線は k イオンの交換平衡曲線よりも上に位置する)には、 i イオンの土壌カラムからの流出曲線は式(2-33)で、 k イオンの流出曲線は式(2-34)で与えられる。式(2-33)の解は、具体的には交換平衡曲線が上に凸で、第 i イオンが第 k イオンに追われて土壌から脱着する場合には、

$$\begin{cases} V_{C_i=C_{i,\infty}} < V & \text{のとき} & C_i = 0 \\ V_{C_i=C_{i,0}} \leq V \leq V_{C_i=0} & \text{のとき} & \varphi_{C_i=C_i} = \frac{d(q_i/q_\infty)}{d(C_i/C_0)} \Big|_{C_i=C_i} \quad \dots\dots\dots (2-35) \\ V < V_{C_i=C_{i,0}} & \text{のとき} & C_i = C_{i,0} \end{cases}$$

で与えられ、交換平衡曲線が下に凸で第 i イオンが土壌に吸着して第 k イオンを追い出す場合には

$$\begin{cases} V < V_{C_i=C_{i,\infty}} & \text{のとき} & C_i = 0 \\ V_{C_i=0} < V < V_{C_i=C_{i,0}} & \text{のとき} & \varphi_{C_i=C_i} = \frac{d(q_i/q_\infty)}{d(C_i/C_0)} \Big|_{C_i=C_i} \quad \dots\dots (2-36) \\ V_{C_i=C_{i,0}} < V & \text{のとき} & C_i = C_{i,0} \end{cases}$$

で与えられる。ただし、第 i イオンの初期流出位置 $V_{C_i=C_{i,0}}$ 、飽和流出位置 $V_{C_i=C_{i,\infty}}$ は式(2-31)式(2-33)より、

$$\begin{cases} V_{C_i=C_{i,0}} = x \left(\frac{dq_i}{dC_i} \right)_{C_i=C_{i,0}} \\ V_{C_i=C_{i,\infty}} = x \left(\frac{dq_i}{dC_i} \right)_{C_i=C_{i,\infty}} \end{cases} \dots\dots\dots (2-37)$$

で与えられる。一方、式(2-34)の解が可能な場合には、第*i*イオン濃度は累積流出量が $V = V_s$ のときに、 $C_i = C_{i,\infty}$ から $C_i = C_{i,0}$ に階段状に増加するが、この V_s は、

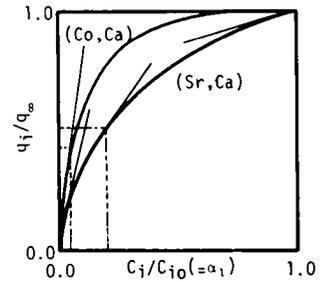
$$V_s = \frac{q_{i,0} - q_{i,\infty}}{C_{i,0} - C_{i,\infty}} x \dots\dots\dots (2-38)$$

で与えられる。Frontal analysis においては式(2-31)で定義される φ が重要な役割を果たすが、この φ は式(2-33)から明らかなように、当該イオンに関する交換平衡曲線 ($q_i/q_{i,0} \sim C_i/C_{i,0}$) の接線の勾配である。物理学的には、 φ は当該イオンの吸着剤と溶液との間での分配係数と一致する。ただし、 φ は C_i によって変化する。つまり Frontal analysis では分配係数値が溶液中のイオン濃度によって変化するとの立場をとっていることになる。即ち、Frontal analysis は基礎式(2-29)が反応式を加味すると非線形の微分方程式となるため、この基礎式を反応式を差分近似することによって区分的に線型化し、これを図解的に継ぎ合わせることによって解を得る方法であるといえる。

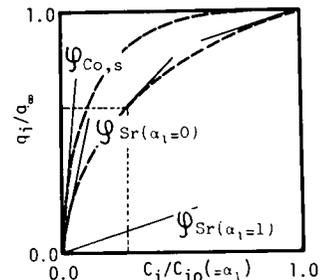
Frontal analysis の適用手順について考える。簡単のために、問題にしているイオン交換系の中に $^{60}\text{Co}^{++}$ イオン、 $^{90}\text{Sr}^{++}$ イオンと Ca^{++} イオンがあり、 Ca^{++} イオンで飽和されている土砂カラム中へ $^{60}\text{Co}^{++}$ イオンと $^{90}\text{Sr}^{++}$ イオンとが流入する場合について考える。土壌に対する交換吸着性の順序は $^{60}\text{Co} > ^{90}\text{Sr} > \text{Ca}$ であり、 Ca を参照イオンとして ^{60}Co 、および ^{90}Sr の交換平衡曲線が図-2.4 (A) のように実測されているとする。即ち、 ^{60}Co および ^{90}Sr 交換平衡曲線は共に上に凸な曲線である。Frontal analysis の一般論より、 ^{60}Co の土壌カラムからの流出曲線は式(2-34)で、 ^{90}Sr の流出曲線は式(2-33)で与えられることになる。今、位置 $x = \infty$ で $C_i = C_{i,\infty} = 0$ 、 $q_i = q_{i,\infty} = 0$ ($i = ^{90}\text{Sr}$ または ^{60}Co) とすれば、 ^{60}Co 濃度が階段状に変化する通水量 V_s, Co は、式(2-38)より、

$$V_{s, \text{Co}} = x \frac{q_{\text{Co},0}}{C_{\text{Co},0}} = x \frac{q_{\infty}}{C_{\text{Co},0}} \frac{d(q_{\text{Co}}/q_{\infty})}{d(C_{\text{Co}}/C_{\text{Co},0})} \Big|_{\alpha_{\text{Co}}=0} \dots\dots\dots (2-39)$$

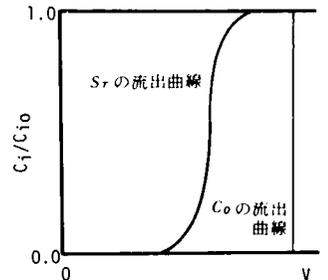
となる。一方、 ^{90}Sr の流出曲線についてはその初期流出位置、飽和流出位置が、式(2-37)より、



(A) 交換平衡曲線



(B) 勾配 φ の決定



(C) 理論流出曲線

図-2.4 Frontal analysis の適用手順

$$\left\{ \begin{array}{l} V_{Sr, Cs_r = Cs_{r,0}} = x \frac{q_\infty}{C_{Sr,0}} \left(\frac{d\beta_{Sr}}{d\alpha_{Sr}} \right) \alpha_{Sr} = 1 \\ V_{Sr, Cs_r = 1} = x \frac{q_\infty}{C_{Sr,0}} \left(\frac{d\beta_{Sr}}{d\alpha_{Sr}} \right) \alpha_{Sr} = 0 \end{array} \right. \dots\dots\dots (2-40)$$

ただし、 α_i 、 β_i は各々 $\alpha_i = C_i / C_{i,0}$ 、 $\beta_i = q_i / q_{i,0}$ であり、通常第*i*イオンの交換平衡曲線を描く場合のパラメータとして用いられる。得られる⁹⁰Srおよび⁶⁰Coの流出曲線 α の概形はほぼ図-2.4(C)のようになる。

2.4.3 井上の理論

すでに紹介した2つの理論式が、複雑な基礎式を何らかの方法で簡略化し、解析的あるいは図解的に解を得ようとしたのに対し、井上の理論は非定常非線型の基礎偏微分方程式を現象面から実験的に解くことをめざした半経験理論であるといえる。

井上は⁽¹⁴⁾、⁽⁴⁰⁾、⁽⁴¹⁾次の仮定の下に理論を展開した。

- (1) 地下水の流線網は時間によらず一定である。
- (2) 地下水の拡散係数と放射性核種の地下水による拡散係数とは等しい。
- (3) 地下水中および土壌中の放射性核種は常に吸着に関して平衡状態にあり、分配係数値 kd が時間的に変化しない。

井上は、放射性核種の地下帯水層における物質収支式として次式を用いた。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left\{ C + \frac{1-f}{f} \rho q \right\} &= \frac{\partial}{\partial x} (D_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (D_y \frac{\partial C}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (D_z \frac{\partial C}{\partial z}) \\ &\quad - \frac{\partial}{\partial x} (v_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (v_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (v_z C) \end{aligned} \dots\dots\dots (2-41)$$

- ここに、 C, q : 各々放射性核種の地下水、土壌中濃度
- f : 地層の空隙率
- ρ : 地層を構成する土壌の密度
- D_x, D_y, D_z : 放射性核種、地下水の x, y, z 方向の拡散係数
- v_x, v_y, v_z : 地下水の x, y, z 方向の流速

この式は、単位体積の帯水層内での放射性核種量の時間的変化の割合が、拡散項と水理学的輸送項によって与えられることを示したもので、放射性核種の自己崩壊の効果は無視されている。地下水の流速は、一般に、極めて遅いので、地下水中の放射性核種と土壌中の放射性核種とは常に平衡状態にあると考え、井上は反応式として次式を用いた。

$$q = kdC \dots\dots\dots (2-42)$$

ここに kd は、放射性核種の地下水(流相)と土壌(固相)間の分配係数で、その性質についてはす

でに前節で詳しく検討した。式(2-42)を式(2-41)に代入し、次の時間に関する変数変換

$$t = \left\{ 1 + \frac{1-f}{f} \rho k d \right\} T \quad \dots\dots\dots (2-43)$$

ここに、 T ：地下水の移動を測る時間スケール

t ：放射性核種の移動を測る時間スケール

を施して、式を整理すると、式(2-41)は、

$$\frac{\partial C}{\partial T} = \frac{\partial}{\partial x} (D_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (D_y \frac{\partial C}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (D_z \frac{\partial C}{\partial y}) - \frac{\partial}{\partial x} (v_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (v_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (v_z C) \quad \dots\dots\dots (2-44)$$

と整理される。式(2-44)は、式(2-41)～式(2-43)において $k d = 0$ 即ち、放射性核種が土壤に吸着されないと考えた場合の式と一致する。このことは、数学的には地下水そのものの移動を記述する基礎式が放射性核種の移動を記述する基礎式と時間軸について相似であることを意味する。井上は、この新・旧時間の変換比 t/T を K_f 値と呼んでいる。

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho k d \quad \dots\dots\dots (2-45)$$

井上の理論は、特殊な場合を除き、解析的には解くことができない基礎式を解く代りに、適当なトレーサー例えば三重水素水、色素等を用いて地下水そのものの地下帯水層での挙動を把握し、その時間軸を式(2-43)によって読み換えることにより、放射性核種の挙動を知る理論であるといえる。このことは、数学的には複雑な基礎方程式を実験によって現象面から解くことに相当する。一般には $K_f > 1$ であるから、現場で行なう地下水の挙動に関する実験の必要期間は、実際に放射性核種が移動するのに要する期間の $1/K_f$ 倍ですむことになる。また、拡散係数 D_x, D_y, D_z および地下水流速 v_x, v_y, v_z を場所の関数として与え、例えば数値的に式(2-44)を解き、地下水そのものの移動を把握することができれば、必ずしも現場で行なう地下水そのものの移動に関する実験は必要ではない。

基礎式(2-44)は放射性核種の濃度 C に関しては線型であるから、濃度 C については発生源の状況に応じて重ね合わせの方法を適用することができる。それ故、濃度 C の入力が複雑に変化しても単位降雨による単位流出曲線から洪水のハイドログラフを得るのと同じ手順によって放射性核種の地中での移動を把握することができる。しかも、現場実験によって、 $f, \rho, k d$ および地下水の流況等を把握するため、抱括的にはあるが対象地域の複雑な地域特性をも考慮に加えることができる。この理論はすでに、我国においても、一般廃棄物埋立処分場周辺の地下水汚染の将来を予測するために適用されており、^{(42)~(44)} 極めて工学的・実用的価値の高い理論であるといえる。⁽⁴⁵⁾

2.4.4 井上の理論の通気層への拡張

すでに紹介した3つの理論は、全てその適用対象が飽和層、即ち、地層間隙が地下水で飽和されている帯水層であった。それ故、これらの理論は不飽和層、即ち地層間隙が地下水で飽和されていない、地表面と地下水面との間の地層である、通気層においては適用することができない。

井上・赤木は^{(46),(47)} 帯水層において展開された井上の理論を通気層へ拡張するために、さらに次

の仮定を設定した。

(4) 地層間隙の地下水による飽和度は時間的・空間的に一定であるとみなせる。

地層間隙の飽和度は、例えば降雨強度等に応じて定まり、地下水位が深い場合等には飽和度は比較的すみやかに降雨強度に応じた平衡値に達するため、⁽⁴⁸⁾ 上記の仮定は一定強度の雨が長時間にわたって降る場合等には妥当な仮定であるといえる。井上・赤木はこの仮定の下に放射性物質の地中での物質収支式を記述し、通気層においては帯水層における K_f 値、式(2-45)に代わる時間変換比として次式、

$$K_{f,u} = 1 + \frac{1-f}{fS} \rho kd \quad \dots\dots\dots (2-46)$$

で定められる通気層における K_f 値、 $K_{f,u}$ を用いればよいことを示した。ここに、 S は地層間隙体積中に占める土壌水分の体積の容積比率で表わされる、地層間隙の飽和度である。式(2-46)で用いる kd 値は飽和土壌カラムを用いて測定した分配係数であることに注意する必要がある。

2.4.5 各理論の比較

すでに紹介した4つの理論は各々他とは異なる特性を有している。表-2.1はこの特性を一覧したものである。これらの理論は、例えば放射性核種の土壌との反応式については式(2-23)を、また地中での物質収支式については次節で述べる式(2-55)を各々の理論で設定した仮定に従って簡略化することによって数学的に得ることができる。これらの理論に共通する適用除外例として、放射性核種が非イオン状で存在する場合には当該核種の地中移動を予測するためには使用できないことが挙げられる。また、放射性廃棄物をセメント固化して地中に埋設する場合のように、放射性核種と共に多量に無機イオンが浸出し、地層中での平衡関係が局部的に乱れるような場合については、これらの理論を適用するのに現実には問題がない場合があっても、理論的には難点があるといえる。

表-2.1 各理論の特性比較

| 項目 | 理論 | Hiester & Vermeulen | Frontal analysis | 井上の理論 | | 本論文で提案する方法 |
|----------------|----|---------------------|----------------------|--------------|--------------|--------------------|
| | | | | | 拡張理論 | |
| 1. 理論構成 | | | | | | |
| • 拡散効果 | | 考慮しない | 考慮しない | 考慮する | 考慮する | 考慮する |
| • 自己崩壊効果 | | 考慮しない | 考慮しない | 考慮しない | 考慮しない | 考慮する |
| • 収支式の型 | | 1次元・非定常 | 1次元・非定常 | 3次元・非定常 | 3次元・非定常 | 3次元・非定常 |
| • 律速反応 | | 2成分間イオン交換 | 多成分間イオン交換 | 2成分間イオン交換 | 2成分間イオン交換 | 2成分間イオン交換 |
| • 反応式の型 | | 非平衡・2次反応 | 平衡・反応式の代わりに交換平衡曲線を使用 | 平衡・ kd 値一定 | 平衡・ kd 値一定 | 平衡・ kd 値は土壌水分の関数 |
| • 核種の形態 | | イオン | イオン | イオン | イオン | イオン |
| 2. 解法 | | 解析的 | 図解的 | 半解析的 | 半解析的 | 解析的 |
| 3. 実用性(現場への適用) | | 難 | 難 | 易 | 易 | やや難 |
| 4. 提案者の研究分野 | | 化学工学 | 分析化学 | 衛生工学 | 衛生工学 | 衛生工学 |
| 5. 提案年次 | | 1952年 | 1945年 | 1963年 | 1971年 | 1977年 |
| 6. 対象の地層 | | 帯水層 | 帯水層 | 帯水層 | 帯水層・通気層 | 帯水層・通気層 |

本研究では、放射性核種の地中移動を予測するのに主として井上の理論と、次節で述べる理論を用いることにする。井上の理論は①核燃料再処理廃液のように水素イオン濃度の高い廃液の地中移動、⁽⁴⁹⁾ ②共存する核種と土壌との交換吸着反応が独立であるとみなせる場合については、多核種が共存する場合の核種の地中移動、⁽⁵⁰⁾ および③安全評価を1次的に試算する場合には、通気層における核種の移動のそれぞれを予測するために適用しても十分に目的を達することができる⁽⁴⁶⁾ことが明らかにされている。

2.5 通気層における放射性核種の移動に関する理論

通気層における放射性核種の移動に関する理論は、帯水層における研究に比べるとそれ程進んでいるとはいえない。通気層における核種の移動に関する研究は、前述した井上の理論の拡張の他にも実験的・理論的な試みが多少は報告されているが^{(48),(51)~(56)} いずれも通気層での核種の移動を全体的・合理的に把握できる程度にまでは進んでいない。

ここでは、通気層における土壌水分の非定常浸透現象と、放射性核種の移動とを関連づけて論ずる基礎式を定式化して提案し、同時に従来の帯水層における理論との関係を明らかにする。本節で定式化の対象にする現象は、均質様な乾燥した通気層に雨水等が供給され、地層の飽和度（土壌水分）が増加する過程における放射性核種の移行現象である。したがって、地層表面に供給される雨水等が断続することによって実地層において生じると思われる土壌水分の変化のヒステリシス現象については検討しない。

2.5.1 土壌水分の移動

通気層内における水分移動のメカニズムは、土壌水分が極めて小さい、つまり土壌の乾燥度が大きい場合には、土粒子の表面に形成される連続した薄膜流（film flow）が卓越し、土壌水分が増加するにつれて、土粒子相互の接触部に表面張力の影響をうけて形成される毛管水滴（capillary drop）の移動による流れ、すなわち毛管流（capillary flow）が卓越すると考えられている。⁽⁵⁷⁾ さらに土壌水分が増加して土粒子間隙が水で飽和されると飽和流になる。本研究が対象にしている通気層は毛管流が卓越する領域にある。

Buckinghamは⁽⁵⁸⁾通気層中を移動する土壌水分のフラックス Q が次式で与えられると考えた。

$$Q = - \lambda \nabla \phi \quad \dots\dots\dots (2-47)$$

ここに、 Q ：単位断面積当りの土壌水分の質量フラックス； $Q = (Q_x, Q_y, Q_z)$

ϕ ：土壌水分の移動に関する総ポテンシャル。

毛管ポテンシャル ψ と重力ポテンシャル ϕ の算術和。

λ ：毛管伝導度（capillary conductivity）又は不飽和透水係数、土壌水分 θ の関数になる。

$\psi = \Psi + \phi$ を代入すると、

$$Q = - \lambda \nabla (\Psi + \phi) \quad \dots\dots\dots (2-48)$$

となる。式(2-48)は重力が作用する通気層中を移動する水分のフラックスを与える基礎式であり、同式により通気層中の土壌水分の移動を記述できることがChilds等⁽⁵⁹⁾により実験的に確かめられて

いる。直交座標系 x, y, z (鉛直方向に z 軸をとる) を用い、土壌水分 θ を土粒子体積に対する土壌水分の容積比として定義すると、土壌水分の保存式は

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = - \frac{\partial Q_x}{\partial x} - \frac{\partial Q_y}{\partial y} - \frac{\partial Q_z}{\partial z} \quad \dots\dots\dots (2-49)$$

となる。式(2-48)を式(2-49)へ代入し、不飽和透水係数 λ が土壌水分 θ の一価関数で表わさ⁽⁵⁸⁾れることを考慮して式を整理すると、次式を得る。^{*}

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left\{ D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial x} \right\} + \frac{\partial}{\partial y} \left\{ D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial y} \right\} + \frac{\partial}{\partial z} \left\{ D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial z} \right\} - \frac{d\lambda}{d\theta} \frac{\partial \theta}{\partial z} \quad \dots\dots\dots (2-50)$$

ただし、

$$D(\theta) \equiv \lambda \frac{\partial \Psi}{\partial \theta} \quad \dots\dots\dots (2-51)$$

$D(\theta)$ は土壌水分拡散係数 (moisture diffusivity) と呼ばれ、例えば cm^2/sec の単位をもつ。

$D(\theta)$ は濃度勾配を起動力とする拡散係数とは異なり、 θ の関数であって、毛管引力による土壌水分の移動を記述する係数である。式(2-50)が通気層中での土壌水分の移動を記述する基礎式である。

2.5.2 放射性核種の移動

通気層内に各辺の長さが dx, dy, dz の微小直方体を考える。地層の飽和度 S を地層間隙体積中に占める土壌水分の容積比として定義する。土粒子単位重量当り含まれる放射性核種量を q 、間隙水単位容積当り含まれる核種量を C とすると、微小直方体内の放射性核種量の時間変化は、単位時間当り微小直方体内に蓄積される核種量と自己崩壊量との和に等しいから、次式が成立する。

$$\frac{\partial}{\partial t} \{ f S C + (1-f) \rho q \} = \frac{\partial F_x}{\partial x} - \frac{\partial F_y}{\partial y} - \frac{\partial F_z}{\partial z} - \frac{0.693}{t_{1/2}} \{ f S C + (1-f) \rho q \} \quad \dots\dots\dots (2-52)$$

ここに、 F_x, F_y, F_z は各々 x, y, z 方向の核種移動のフラックスであり、次のように定めることができる。

$$\begin{cases} F_x = f S C Q_x - f S D_x \frac{\partial C}{\partial x} \\ F_y = f S C Q_y - f S D_y \frac{\partial C}{\partial y} \\ F_z = f S C Q_z - f S D_z \frac{\partial C}{\partial z} \end{cases} \quad \dots\dots\dots (2-53)$$

ここに、 D_x, D_y, D_z : 各々 x, y, z 方向の放射性核種の濃度勾配を起動力とする拡散係数

f : 地層の空隙率 (一定と仮定する)

ρ : 土粒子の密度, $t_{1/2}$: 放射性核種の半減期

式(2-53)を式(2-52)へ代入し、土壌水分のフラックス Q を式(2-48)で、また地層の飽和度の代

* 重力のポテンシャル ϕ は z 方向成分のみを有する。

りに土壌水分 θ を用いると、式(2-52)はつぎのように変形される。ただし、土壌水分 θ と地層の飽和度 S との間には次式が成立する。

$$fS = (1-f)\theta \quad \dots\dots\dots (2-54)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \{(\theta + \rho kd_u)C\} &= \frac{\partial}{\partial x} \{ \theta CD(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial x} \} + \frac{\partial}{\partial y} \{ \theta CD(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial y} \} \\ &+ \frac{\partial}{\partial z} \{ \theta CD(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial z} \} - \frac{\partial}{\partial z} \{ \theta C \lambda \} \\ &+ \frac{\partial}{\partial x} \{ \theta D_x \frac{\partial C}{\partial x} \} + \frac{\partial}{\partial y} \{ \theta D_y \frac{\partial C}{\partial y} \} + \frac{\partial}{\partial z} \{ \theta D_z \frac{\partial C}{\partial z} \} \\ &- \frac{0.693}{t_{1/2}} \{ (\theta + \rho kd_u)C \} \quad \dots\dots\dots (2-55) \end{aligned}$$

ここに、 kd_u は不飽和状態における放射性核種の分配係数⁽⁶⁰⁾であり次式で定義される。

$$kd_u = q/C \quad \dots\dots\dots (2-56)$$

式(2-55)が、通気層における放射性核種の移動を記述する基礎式である。放射性核種の通気層中での移動を予測するには、式(2-50)と式(2-55)とを連立して解く必要がある。この場合、基礎実験によって λ 、 $D(\theta)$ 、 kd_u 、 D_x 、 D_y 、 D_z 等々の基礎データを得ておく必要がある。これらの基礎式は解析的に解くことが不可能であるため、求める解を得るには電子計算機の助けが必要になる。

2.5.3 従来の理論との関係

(1) 帯水層における理論との関係

帯水層においては、土粒子の間隙は完全に水で飽和されているため、土壌水分 θ は時間・場所によらず一定値 $f/(1-f)$ になる(地層の飽和度は1.0になる)。式(2-55)で核種の自然減衰項を無視し、 $f = (1-f)\theta$ なる関係を代入して式を整理すると次式、

$$\frac{\partial}{\partial t} \left\{ 1 + \frac{1-f}{f} \rho kd \right\} C = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial z} (\lambda C) \quad \dots\dots\dots (2-57)$$

を得る。ここに式(2-55)中の kd_u は飽和状態での核種の分配係数 kd に等しくなる(式(3-5)参照)。但し、簡単のため地層の空隙率 f は一定であると仮定している。式(2-57)は、

$$t = \left(1 + \frac{1-f}{f} \rho kd \right) T \quad \dots\dots\dots (2-43)$$

と変数変換することにより地下水の移動を記述する基礎式と一致する。これは前節で紹介したように、井上が帯水層における放射性核種の移動を予測するのに用いた考え方である。

(2) 通気層への井上の拡張理論との関係

通気層に供給される雨水等が一定強度で比較的長時間継続する場合には、通気層中の土壌水分はすみやかに降雨強度に応じた一定値に到達する。⁽⁴⁸⁾このような場合、すなわち土壌水分が時間・場所に

よらず一定とみなせる場合には、式(2-55)は簡単になる。すなわち、式(2-55)において核種の自然減衰項を無視し、土壤水分 θ （したがって飽和度 S ）を一定と置いて式を整理すると、

$$\frac{\partial}{\partial t} \left\{ 1 + \frac{1-f}{fS} \rho k d_u \right\} C = \frac{\partial}{\partial x} (D_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (D_y \frac{\partial C}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (D_z \frac{\partial C}{\partial z}) - \frac{\partial}{\partial z} (\lambda C) \quad \dots\dots\dots (2-58)$$

を得る。ここで、

$$t = \left\{ 1 + \frac{1-f}{fS} \rho k d_u \right\} T \quad \dots\dots\dots (2-59)$$

と変数変換すれば、式(2-58)において、核種が全く土粒子に吸着されず($k d_u = 0$)、水と共に移動するとした場合の式に相似な、式(2-60)を得ることができる。

$$\frac{\partial C}{\partial T} = \frac{\partial}{\partial x} (D_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (D_y \frac{\partial C}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (D_z \frac{\partial C}{\partial z}) - \frac{\partial}{\partial z} (\lambda C) \quad \dots\dots\dots (2-60)$$

これは、前節で紹介したように、井上・赤木が通気層における放射性核種の移動を予測する近似法として提案した拡張理論と一致する。

井上の理論の通気層への拡張理論と、本節で提案した理論とは、すでに述べたように理論展開の大筋において一致している。しかしながら、前者では放射性核種の土壌との反応を記述する式として式(2-42)を用いるのに対し、後者では式(2-56)を用いている。すなわち、前者では分配係数値が地層間隙の水による飽和度に依存しないと考えているのに対し、後者では分配係数値が飽和度(S)によって変化すると考えている。不飽和状態における分配係数値 $k d_u$ と飽和状態での分配係数値 $k d$ との間には、後述するように、実験的には式(3-5)で表わされる関係にある。

本節で提案した方法およびその近似法、井上・赤木が提案した井上の拡張理論等、通気層における放射性核種の移動を予測する理論を整理・分類して表-2.2に示す。各理論・方法の具体的な特徴、実験値との整合性等については第3章第6節および第7節で詳しく検討する。

表-2.2 通気層における放射性核種の移動を予測する理論の分類

| 分配係数 kd | 土壤水分の移動に関する仮定 | |
|--|--|---|
| | ・仮定は採用しない。 土壤水分の移動は非定常現象として解析する。 (θ : Un-steady) | ・土壤水分分布の定常性を仮定。 土壤水分の移動は定常現象として解析する。 (θ : Steady) |
| kd は θ の関数 $\begin{cases} q = k d_u C \\ K_{fa} = 1 + \frac{1-f}{fS} \rho k d_u \end{cases}$ | (1) 本論文で提案した厳密法 | (2) 本論文で検討した近似予測法 |
| kd は θ に依存しない $\begin{cases} q = k d C \\ K_{fa} = 1 + \frac{1-f}{fS} \rho k d \end{cases}$ | (3) 可能な予測法であるが工学的価値が低い | (4) 井上・赤木が提案した井上の拡張理論 |

2.6 ま と め

本章では、放射性核種の地中移動に関する理論について述べた。本論文では、放射性核種が非イオン状態で存在する場合の地中での挙動について実験的に検討すること、非イオン核種の移動を評価する経験的方法について検討すること、および理論的検討については別の機会に譲ること、を述べた。ついで放射性核種の地下水と土壌との間での交換平衡現象について論じ、帯水層における放射性核種の移動を記述する3つの理論を紹介した。最後に、現在、核種の地中移動を全体的に論ずる場合の隘路になっている通気層における放射性核種の挙動を記述する基礎式を定式化して提案した。

現在、放射性核種の帯水層における挙動に関する研究努力は、主として核種の土壌との反応をどのように定式化し、それを収支式との関連においてどのように解くかという問題に注がれている。このような理論的検討の成果は環境中における重金属の挙動に関する研究課題においても活発に活用されている。通気層における核種の挙動については、帯水層における研究程は活発でないものの、現在すでに放射性核種の移動を土壌水分の非定常浸透現象との関連において論じうる段階にきている。それ故、第4章で具体化するように、放射性廃棄物の地中処分に付随して必然的に発生する、人体に対する放射線学的安全性に関する問題は、今や全地層について、多くの仮定はあるものの、統一的に論ずることができる。

一方、放射性核種が非イオン状態で存在する場合の地中移動に関する研究は、最も遅れているといえる。本論文においては第3章で、実験データを基にして、非イオン状放射性核種の地中移動を経験的に評価する方法について明らかにする。しかし非イオン状核種の土壌との反応機構を基礎にした理論展開は今後の研究課題として残されているといわざるを得ない。また、最近では、電子計算機の普及、システム工学の発展、米国を中心とする環境アセスメントをめぐる諸活動を反映して、放射性核種の環境における諸反応の反応機構の各々について研究を深めるよりは、現在すでに明らかにされている研究成果を総合して、地圏のみにとどまることなく環境全体における核種の挙動を把握する手法、モデル等が模索され、提案されつつある。

参 考 文 献

- (1) 井上頼輝・森澤真輔・宮武法善：非イオン状 ^{90}Y の地中移動，日本原子力学会誌，18〔7〕，445～451，(1976)
- (2) 森澤真輔：放射性核種の地下帯水層における挙動に関する研究，京都大学修士学位論文(1971)
- (3) 井上頼輝・森澤真輔：地下帯水層における放射性核種の挙動，土木学会第26回年次学術講演会講演集，Ⅰ-227，629～632，(1971)
- (4) Stumm, W. and Morgan, J.J.: "Aquatic chemistry" (1970) John Wiley and Sons, New York
- (5) Fisher, H. and Fernando, Q.: "Ionic Equilibria in Analytical Chemistry" (1963) John Wiley and Sons, New York
- (6) Sillen, L.G.: "Gibbs Phase Rule and Marine Sediments" (1967) in R.F. Gould, ed., Adv. Chem. Ser. 67, A.C.S. Washington D.C.
- (7) Shindler, P.W.: "Heterogeneous Equilibria Involving Oxides, Hydroxides, Carbonates and Hydroxidecarbonate" (1967) *ibid.*
- (8) Berner, R.A.: "Principles of Chemical Sedimentology" (1971) McGraw-Hill Book Co., New York
- (9) Pourbaix, M.: "Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solutions" (1966) Pergamon Press, Oxford
- (10) 市川富士夫他訳：“放射化学の基礎”（1962），南江堂
- (11) 橋本徳昭：重金属の海洋環境での挙動に関する化学平衡論，京都大学修士学位論文（1975）
- (12) 堀部純男編：“海洋無機化学”（1975），東京大学出版会
- (13) 成田耕造・垣花秀武：“最新イオン交換”（1968），広川書店
- (14) 井上頼輝：放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究，京都大学博士学位論文（1970）
- (15) Cearlock, D.B. et.al.: Mathematical simulation of ground-water transport of radionuclides at Hanford, BNWL-SA-3494, (1970)
- (16) Routson, R.C. and Serne, R.J.: Experimental support studies for the PERCOL and TRANSPORT model, BNWL-1719, (1972)
- (17) Serne, R.J.: Experimental method for obtaining PERCOL model input and verification, BNWL-1721, (1973)
- (18) 筒井天尊・西牧研社：放射性核種の帯水砂層中での挙動に関する基礎的研究，土木学会論文集，No.200，25～29，(1972)
- (19) Watters, R.L. and Jhonson, J.E.: A study of unsupported ^{210}Po for ion exchange in soil and uptake in vegetation, COO-1733-3, (1969)

- (20) Ahlstrom, S.W. et.al.: Methods for estimating transport model parameters for regional groundwater systems, BNWL-1717, (1974)
- (21) Baetsle, L.H.: Computational methods for the prediction of underground movement of radionuclides, Nuclear Safety, 8[6], 576-588, (1967)
- (22) Robertson, J.B.: Digital modeling of radioactive and chemical waste transport in the Snake River Plain aquifer at the NRTS, U.S. Geological Survey, IDO-22054, UC-70, (1974)
- (23) 桂山幸典・福井正美: Cs および Sr イオンの帯水砂層における吸・脱着反応について, 土木学会第 28 回年次学術講演会講演概要集, I - 253, 515 ~ 516, (1973)
- (24) Booth, R.S. et.al.: A system analysis methodology for predicting dose to man from a radioactivity contaminated terrestrial environment, ORNL-ESD. Pub. No.546, Proc. of the 3rd National Symposium of Radioecology, (1971)
- (25) Trubey, D.K. et.al.: The EXREM III computer code for estimating external radiation dose to populations from environmental releases, ORNL-TM-4322, (1973)
- (26) Killough, G.G.: INDOS- conservational computer codes to implement ICRP-10A models for estimation of internal radiation dose to man, ORNL-4916, (1974)
- (27) Killough, G.G. et.al.: INREM- a FORTRAN Code which impliments ICRP 2 models of internal radiation dose to man, ORNL-5003, (1975)
- (28) Moore, R.E.: AIRDOS- a computer code for estimating population and individual doses resulting from atmospheric releases of radionuclides from nuclear facility, ORNL-TM-4687, (1975)
- (29) U.S. Atomic Energy Committee: Environmental statement, waste management operations Hanford Reservations, Richland, Washington, WASH-1538, Draft (1974)
- (30) U.S. Atomic Energy Committee: HERMES---a digital computer code for estimating regional effects from the nuclear power industry, HEDL-TME-71-168, UC-80, Reactor Technology, (1971)
- (31) Grove, D.B.: A method to describe the flow of radioactive ions in groundwater, SC-CR-70-6139, (1970)
- (32) Routson, R.C. and Serne, R.J.: One-dimensional model of the movement of trace radioactive solute through soil columns : The PERCOL model, BNWL-1718, (1972)

- (33) Hiester, N.K. and Vermeulen, T.: Saturation performance of ion-exchange and desorption columns, Chem. Eng. Prog., 48[10], 505-516, (1952)
- (34) Sillen, L.G.: On filtration through a sorbent layer (I), Arkiv für Kemi, Band 22A, No.15, 1-22, (1945)
- (35) Sillen, L.G.: On filtration through a sorbent layer (II), Arkiv für Kemi, Band 22A, No.15, 1-12, (1945)
- (36) Sillen, L.G.: On filtration through a sorbent layer (III), Arkiv für Kemi, Band 25A, No.4, 1-26, (1947)
- (37) Sillen, L.G.: On filtration through a sorbent layer (IV), Arkiv für Kemi, Band 2, No.34, 477-498, (1950)
- (38) Sillen, L.G.: On filtration through a sorbent layer (V), Arkiv für Kemi, Band 2, No.35, 499-512, (1950)
- (39) Thomas, H.C.: Heterogeneous ion exchange in a flowing system, J. Am. Chem. Soc., 66, 1664, (1944)
- (40) Inoue, Y. and Kaufman, W.J.: Prediction of movement of radionuclides in solution through porous media, Health Physics, 9, 705-715, (1963)
- (41) Inoue, Y.: Investigation of deep well injection of radioactive waste, Doctoral thesis, California University, Berkley, (1963)
- (42) 井上頼輝・森澤真輔：地下水の汚染，その現状と傾向，公害と対策，10〔9〕，919～930，(1974)
- (43) 井上頼輝・森澤真輔・山口泰正：廃棄物の陸上埋立に起因する地下水汚染の現状と将来予測，土木学会第11回衛生工学研究討論会論文集，47～52，(1975)
- (44) Inoue, Y.: Prediction of radionuclide migration in water at JAERI, Proc. Symp. Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/15, 199-214 (1967)
- (45) Internation Atomic Energy Agency: "Radioactive Waste Disposal into the Ground", 41-44, (1965), IAEA Safety Ser. No.15
- (46) 井上頼輝・赤木文行：地下通気層における放射性核種の挙動について，土木学会第26回年次学術講演会講演集，Ⅰ-228，633～634，(1971)
- (47) 赤木文行：通気層における放射性核種の挙動について，京都大学修士学位論文(1971)
- (48) 井上頼輝・森澤真輔・馬原保典：通気層における放射性核種の移動(Ⅰ)，日本原子力学会誌，17〔7〕，376～384，(1975)
- (49) 岩井重久・井上頼輝・西牧研壯：再処理廃液中核種の地下移動，日本原子力学会誌，10〔8〕，435～440，(1968)
- (50) 森澤真輔：放射性廃棄物地中処分場の立地選定(Ⅱ)，日本原子力学会誌，15〔7〕，503～508，(1973)

- (51) 井上頼輝・森澤真輔・馬原保典：通気層における放射性核種の移動(Ⅱ)，日本原子力学会誌，18(9)，600～605，(1976)
- (52) Schwille, F. et.al.: Model experiments on fluid flow in the transition zone from unsaturated to saturated soil, Proc. Symp. Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/11, 151-159, (1967)
- (53) Winograd, I.J.: Radioactive wastes storage in the arid zone, Trans. Amer. Geophysical Union, 55[10], (1974)
- (54) Horton, J.H.: Soil moisture flow as related to the burial of solid radioactive waste, DPST-75-218, Savannah River Labo., (1975)
- (55) Marter, W.L.: Ground waste disposal practice at the Savannah River Plant, Proc. Symp. Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/7, 95-106, (1967)
- (56) Dlouhy, Z.: Movement of radionuclides in the aerated zone, *ibid*, SM-93/18, 241-249, (1967)
- (57) Childs, E.C.: "Soil water phenomena" (1969) Jhon-Wiley and Sons, London
- (58) Buckingham, E.: Studies on soil moisture movement, US. Dept. Agr. Bur., Soil Bul., No.38, (1907)
- (59) Childs, E.C. and George, N.C.: The permeability of porous materials, Proc. Roy. Soc., A201, 392-405, (1950)
- (60) 井上頼輝・森澤真輔：放射性核種の地下水と土壌との間の分配係数値，日本原子力学会誌，18(8)，524～534，(1976)

第3章 放射性核種の地中移動に関する実験的研究

3.1 概 説

本章では放射性核種が地中でどのように移動するかについて、実験的に検討する。まず地下水と土壌とが作る系が、土壌の種類、廃棄物固化体の埋設等によってどのように変化し、その変化が、放射性核種の土壌との交換反応にどのような影響を及ぼすかについて検討する。ついで、前章において、理論的検討事項から除外した非イオン状放射性核種の地中移動について⁹⁰Yを例にして詳しく検討する。さらに、土壌カラムを用いてイオン状の放射性核種が単一で、あるいは多種同時に存在する場合についてその移動特性を明らかにする。これらの基礎実験から得られるデータに基づいて、各々帯水層模型および通気層模型を作製し、これらの地層内での放射性核種の挙動を明らかにする。同時に前章で紹介した提案した放射性核種の移動を記述する理論を用いて、核種の移動や濃度分布を予測し、実測値と比較・検討することによって理論の適用可能性を検証する。

3.2 地下水中の無機塩が分配係数値に及ぼす効果

ここでは、放射性核種の地中での移動の難易度を表わす指標になる核種の分配係数値が環境因子の変化に応じてどのように変化するかを明らかにする。まず、地下水が土壌と接触することによってその水質がどのように変化するかを把握し、ついでセメント固化体からの無機成分の浸出および放射性核種の浸出について明らかにする。放射性核種の分配係数値が地下水中の共存イオンの変化と共に変化することについては、すでに前章で明らかにした。ここでは、この放射性核種の分配係数値の変化をどの共存イオンに注目して予測するのが有効であるかを明らかにするとともに、その他の因子例えば地層の飽和度、土壌の陽イオン交換容量等と分配係数値との関係についても検討する。

本節では、放射性物質が漏出する地圏に共存する多くの物質の内、特に無機物質が分配係数値に及ぼす影響について論ずる。放射性物質の地中移動特性は、共存する有機物質によっても大きく影響されることが⁽¹⁾知られているが、ここでは論じない。放射性核種の土壌と地下水の間の分配現象（交換反応）が、有機物質の存在によってどのように変化するかについては、定性的な実験結果が集積されつつある段階である。有機物質の濃度と核種の分配係数値との関係を示す定量的な関係式（実験式）はほとんど報告されていないようである。

3.2.1 地下水と土壌との相互作用

雨水が地中を浸透したり、地下水が地下水層中を移動したりする場合には、地下水と地層を構成する土壌との間で物質の交換が起って水質が変化する。ここでは、前章第3節で論じたように、放射性核種の分配係数値の変化に主要な影響を及ぼすと考えられる無機成分であるCaとMgの濃度変化について考える。

(1) 炭酸カルシウムの飽和平衡

土壌と接触する地下水中のCa濃度が変化する主要な原因の1つとして、炭酸カルシウムの溶解・沈澱反応を挙げることができる。⁽²⁾炭酸カルシウムの溶解・沈澱反応については上水処理の分野にお

いても詳しく検討されている。(3),(4)炭酸カルシウムの溶解・沈澱反応は次式



で表わすことができる。この反応が右向(溶解)あるいは左向(沈澱)に進行するかは、炭酸カルシウムの溶解度定数、炭酸の解離定数等から定義される飽和指数 (Saturation Index)⁽⁴⁾を用いて推定することができる。ここに飽和指数 I_t は次式で定義される。

$$\left\{ \begin{array}{l} I_{25^\circ C} = pH - pH_s \\ I_t = I_{25^\circ C} + 0.015(t - 25) \\ pH_s = 8.313 - \log(Ca^{++}) - \log(A) \end{array} \right. \quad \dots\dots\dots (3-2)$$

ここに、 pH : 実際の水素イオン濃度 (実測 pH 値)
 pH_s : 反応(3-1)が平衡状態にある場合の平衡 pH 値
 (Ca^{++}) : 地下水中の Ca 濃度 (meq/ℓ)
 (A) : 地下水中の酸消費量 ($pH 5$)(meq/ℓ)
 t : 水温 (°C)

式(3-1)の反応の進行方向は、 I_t の符号によってつぎのように推定することができる。

$$\left\{ \begin{array}{l} I_t < 0 \quad \dots\dots \text{未飽和状態: 土壌中の炭酸カルシウムが溶解する} \\ I_t = 0 \quad \dots\dots \text{平衡状態} \\ I_t > 0 \quad \dots\dots \text{過飽和状態: 地下水中の } Ca \text{ が } CaCO_3 \text{ になって沈澱する} \end{array} \right. \quad \dots\dots\dots (3-3)$$

反応の進行方向の推定(3-3)は、熱力学的に可能な反応(3-1)の進行方向を示しているのであるが、地下水中で生じる他の平衡反応との競合を考慮していないこと、反応(3-1)の反応速度が遅いこと等が原因で、現実の地下水・土壌系においては1時点での飽和指数の符号だけから反応の進行方向を推定するには無理がある。即ち、 I_t の符号と地下水中の Ca 濃度の増減の相関は強いとは言えない(図-3.1参照)。

一方、1定時間を経て測定した飽和指数の増分 ΔI_t と地下水中の Ca 濃度(分析の都合上、 $Ca + Mg$ 濃度を定量した)の増分との間には強い相関関係が認められる。試料土砂 10g を硬質ガラス製マイエルトリ、ここに水道水 50 ml を添加し、ゴム栓をした後時々攪拌しながら約48時間放置する。実験の前後で、水温、 pH 、酸消費量($pH 5$)および水中の $Ca + Mg$ 濃度を実測し、飽和指数 I_t の増分と $Ca + Mg$ 濃度の増分とを算出して、その結果を図-3.2(試料土壌は原研・東海研究所構内より採取したもの)に示した。同図より、地下水中の $Ca + Mg$ 濃度の増減は、飽和指数の符号(図-3.1)よりはむしろ、飽和指数の変化量との相関が強いことがわかる。

直径 9 cm、有効長さ 94 cm のアクリル製円筒に、原研・東海研究所で採取した砂 10.9 kg を充填し、定流量ポンプを用いて水道水を供給した。カラム流入水および流出水中の $Ca + Mg$ 濃度、酸消費量 ($pH 5$) および pH 値を測定した。測定結果を整理して表-3.1に示す。表中、通水量はカラムに充

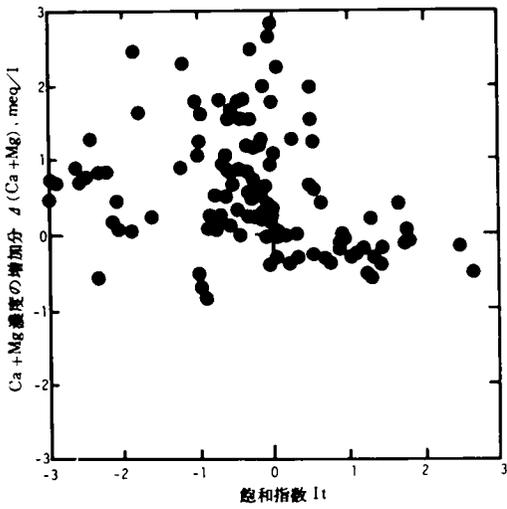


図-3.1 飽和指数値 I_s と地下水中 $Ca + Mg$ 濃度の変化

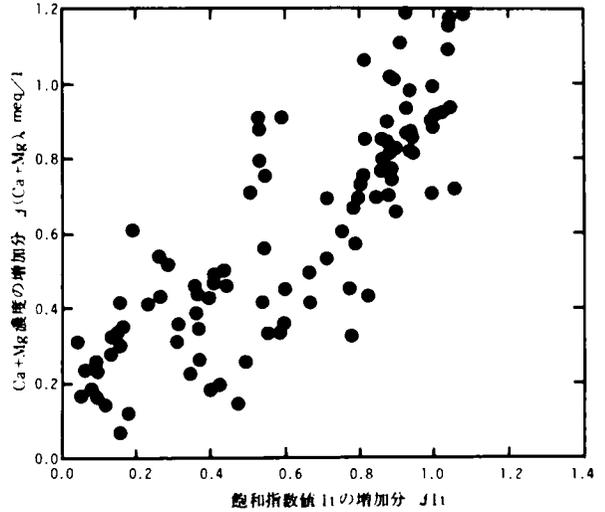


図-3.2 飽和指数の増分 ΔI_s と地下水中 $Ca + Mg$ 濃度

填した砂の体積(約4.13ℓ)の何倍量の水道水がカラムを通過したかを表示した。表1.3より、炭酸カルシウム未飽和($I_s < 0$)の状態にある水道水が試料砂と接触することにより、砂中のカルシウムを溶解して飽和状態($I_s \approx 0$)に接近することが解る。同時に、 $Ca + Mg$ 濃度、 pH および酸消費量($pH5$)は共に増加している。 $Ca + Mg$ 濃度の増分は、通水量が多くなるにつれてやや漸減する傾向が認められるが、急速には減少しないことが解る。

(2) 土壌の分類

土壌を水道水と接触させた場合に、水中の $Ca + Mg$ 濃度が増加するか、減少するかによって区分し前者をカルシウム過剰土、後者をカルシウム不足土、また、水中の pH 値が増加するか減少するかによって区分し、前者をアルカリ土、後者を酸性土と呼ぶことにする。

日本原子力研究所・東海研究所を初め、我国の主要な原子力施設から採取した17種類の土壌の一定量(1~25 g)を硬質ガラス製マイエルにとり、水道水50 ml(代表的水質を表-3.2に示す)を加えてゴム栓をし、48時間以上放置した後に、上澄液の pH 、 $Ca + Mg$ 濃度を実測した。上述の分類基準に従って、各試料土を分類した結果を表-3.3に示す。表-3.3には各試料土の物理的性状を整理して同時に示した。試料土のうち、A,B,D,M,N,OおよびPはカルシウム過剰土であり、C,E,F,G,H,I,J,K,LおよびQはカルシウム不足土である。一方、試料土の内、B,C,E,F,H,I,J,K,LおよびQは酸性土壌であるが、A,D,G,M,N,OおよびPについては上澄液中の pH が増加する場合も減少する場合も観測され、いずれとも判定することができなかった。ただし、試料土Bを除けば、カルシウム過剰土とアルカリ土、カルシウム不足土と酸性土とがほぼ一致しているといえる。炭酸カルシウムの溶解・沈澱反応(3-1)から考えると、炭酸カルシウムの溶解によって液相中の Ca 濃度、酸消費量($pH5$)、 pH 値は共に増加する。試料土B以外の土壌についてはこのような傾向を認めることができたが、試料土Bの場合には $Ca + Mg$ 濃度の増加に伴って pH 値が減少する傾向が認められた(表

表-3.1 水道水と土壌との相互作用

| 通水量* | 流入水水質 | | 流出水水質 | | 水質の變化量 | | | | |
|--------|-------|-----------------------|-------|-----------------------|---|-----------------|-------|-------|-------|
| | pH | Ca+Mg 酸消費量 飽和指数 | pH | Ca+Mg 酸消費量 飽和指数 | Ca+Mg Δ (酸消費量) Δ (飽和指数) | Δ (飽和指数) | | | |
| 0.42 | 6.96 | 0.840 | 7.98 | 1.502 | 1.388 | -0.014 | 0.662 | 0.786 | 1.610 |
| 2.53 | 7.20 | 0.665 | 8.20 | 1.349 | 1.103 | 0.060 | 0.684 | 0.601 | 1.529 |
| 3.74 | 7.35 | 0.810 | 8.00 | 1.402 | 1.127 | -0.114 | 0.592 | 0.525 | 1.161 |
| 9.42 | 7.20 | 0.826 | 7.86 | 1.575 | 1.288 | -0.146 | 0.749 | 0.690 | 1.276 |
| 13.13 | 7.18 | 1.100 | 7.85 | 1.865 | 1.392 | -0.049 | 0.765 | 0.710 | 1.269 |
| 20.20 | 7.40 | 0.926 | 7.88 | 1.013 | 1.565 | 0.020 | 0.887 | 0.642 | 1.001 |
| 23.42 | 7.70 | 0.943 | 8.04 | 1.825 | 1.484 | 0.160 | 0.882 | 0.802 | 0.965 |
| 31.66 | 7.47 | 0.814 | 7.10 | 1.490 | 1.288 | -0.130 | 0.676 | 0.686 | 1.023 |
| 34.13 | 7.62 | 0.822 | 7.94 | 1.410 | 1.248 | -0.128 | 0.590 | 0.630 | 0.859 |
| 38.01 | 7.65 | 0.846 | 8.10 | 1.543 | 1.340 | 0.103 | 0.697 | 0.718 | 1.045 |
| 44.27 | 7.50 | 1.063 | 8.00 | 1.643 | 1.416 | 0.054 | 0.580 | 0.742 | 1.012 |
| 51.86 | 7.55 | 1.059 | 7.97 | 1.760 | 1.589 | 0.104 | 0.701 | 0.863 | 0.981 |
| 62.36 | 7.72 | 1.087 | 8.10 | 1.611 | 1.472 | 0.213 | 0.544 | 0.617 | 0.846 |
| 75.58 | 7.15 | 0.826 | 7.60 | 1.422 | 1.312 | -0.442 | 0.596 | 0.562 | 0.929 |
| 82.53 | 6.70 | 0.803 | 7.58 | 1.422 | 1.304 | -0.465 | 0.592 | 0.622 | 1.394 |
| 110.76 | 7.01 | 1.325 | 7.62 | 1.788 | 1.484 | -0.270 | 0.463 | 0.481 | 0.910 |
| 134.98 | 7.22 | 1.498 | 7.56 | 1.847 | 1.506 | -0.309 | 0.349 | 0.606 | 0.655 |
| 160.13 | 6.90 | 1.205 | 7.60 | 1.875 | 1.525 | -0.257 | 0.670 | 0.775 | 1.200 |

*単位は〔1/砂の体積〕

**カルシウム・マグネシウム濃度、酸消費量(pH5)の単位は〔meq/l〕

表 - 3.2 実験に用いた水道水の代表的な水質

| 水質項目 | 濃度 (meq/l) | 水質項目 | 濃度 (meq/l) | 水質項目 | 濃度 (ppm) |
|-------------------------------|---------------|-------------------------------|---------------|-----------|-------------|
| Ca ⁺⁺ | 1.00 | F ⁻ | 0.01 | 酸消費量(pH9) | 0 |
| Mg ⁺⁺ | 0.53 | NO ₃ ⁻ | 0.03 | 全鉄 | 0.1 |
| Na ⁺ | 0.90 | CO ₃ ⁻⁻ | 0 | 全亜鉛 | 0.9 |
| K ⁺ | 0.03 | SO ₄ ⁻ | 0.60 | 全マンガン | 0 |
| 全陽イオン | (2.46) | 全陰イオン | (2.42) | 全鉛 | 0 |
| HCO ₃ ⁻ | 1.04 | 総硬度 | 1.53 | pH(15℃) | 7.1 |
| Cl ⁻ | 0.80 | 酸消費量(pH5) | 1.04 | | |

表 - 3.3 試料土壌の性質の区分

| 土壌の種類 | 密度 g/cm ³ | 有効径 mm | 均等係数 | 土壌の種類 | Ca過剰土壌か? | アルカリ土壌か? |
|-------|-------------------------|-----------|------|--------|----------|----------|
| A | 2.65 | 0.51 | 2.00 | 砂 | Yes | Yes/No |
| B | 1.68 | - | - | シルト~粘土 | Yes | No |
| C | 2.46 | 0.20 | 9.50 | シルト~粘土 | No | No |
| D | 2.51 | 0.26 | - | 礫~砂 | Yes | Yes/No |
| E | 2.17 | 0.43 | - | シルト~粘土 | No | No |
| F | 2.52 | 0.34 | 6.76 | シルト~砂 | No | No |
| G | 2.55 | 0.38 | - | 礫 | No | Yes/No |
| H | 2.63 | 0.12 | 3.33 | シルト~粘土 | No | No |
| I | 2.26 | 0.24 | 4.08 | シルト~粘土 | No | No |
| J | 2.14 | 0.24 | 5.32 | シルト~粘土 | No | No |
| K | 2.54 | 0.21 | 1.86 | 細砂 | No | No |
| L | 2.28 | 0.26 | 4.15 | シルト | No | No |
| M | 2.49 | - | - | 砂 | Yes | Yes/No |
| N | 2.95 | 0.45 | - | 礫 | Yes | Yes/No |
| O | 2.49 | 0.22 | 1.82 | 細砂 | Yes | Yes/No |
| P | 2.61 | 0.21 | 1.81 | 細砂 | Yes | Yes/No |
| Q | 2.46 | 0.13 | 6.08 | シルト~粘土 | No | No |

(註) -印は未測定であることを意味する。

3.2.2 地下水とコンクリートとの相互作用

放射性廃棄物をセメント化して、地中に処分すると、地下水中の無機塩濃度は土壌から供給されるものの他に、セメント固化体からも供給されて大幅に変化する。ここでは、まずセメント固化体が地下水と接触することによってどの程度のCa、Mgが地下水へ浸出するかを実験的に検討する。ついで、本論文で検討対象にしている原子力発電所から排出される放射性核種のセメント固化体からの浸出速度を実測する。

(1) セメント固化体からの無機塩の浸出

地中に処分された放射性廃棄物のセメント固化体からは、放射性核種だけでなく、セメントを構成する無機成分、アルカリ分等が浸出し、地中へ移行する。ここでは、セメント固化体からのカルシウムの浸出を調べるため、 ^{45}Ca をトレーサーに用いた模擬固化体による浸出実験を実施した。模擬固化体は高さ5.0 cm、直径3.5 cmの円柱状で上面と下面に塩化ビニール板をはりつけたものを用いた。容量250mlのポリエチレンビンにセメント（市販の普通ポルトランド・セメントを使用した）固化体をいれ、水道水を250ml添加する。密栓をし、一定時間毎に液相中の ^{45}Ca 濃度、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度、 pH 、酸消費量（ $\text{pH}5$ ）を測定し、セメント固化体からの ^{45}Ca の累積浸出量を算定した。セメント固化体の作製条件を整理して表-3.4に、また ^{45}Ca の浸出量の経時変化を図-3.3に示す。尚、実験に際しては固化体の浸漬液はサンプリング毎に全量を交換した。実験期間中の水温は $15\text{ }^{\circ}\text{C} \sim 20\text{ }^{\circ}\text{C}$ の範囲で変動した。

表-3.4 セメント固化体供試体の性質

| 核種 | 供試体No | 高さ cm | 半径 cm | 重量 g | 水・セメント比 W/C | 養生日数 day | 供試体比放射能 $\mu\text{Ci/g}$ | 固化放射能 μCi |
|--------------------|-------|----------|----------|---------|----------------|-------------|-----------------------------|-------------------------|
| ^{54}Mn | 1 | 5.1 | 1.75 | 87.3 | 0.5 | 8 | 140×10^{-2} | 1.22 |
| | 2 | | | 87.3 | | | 140×10^{-2} | 1.22 |
| | 3 | | | 87.9 | | | 140×10^{-2} | 1.23 |
| ^{110m}Ag | 1 | 5.0 | 1.75 | 85.9 | 0.5 | 7 | 3.90×10^{-1} | 33.5 |
| | 2 | | | 84.5 | | | 3.90×10^{-1} | 33.0 |
| | 3 | | | 84.9 | | | 3.90×10^{-1} | 33.1 |
| ^{65}Zn | 1 | 5.0 | 1.75 | 84.2 | 0.5 | 7 | 1.80×10^{-1} | 15.2 |
| | 2 | | | 85.8 | | | 1.80×10^{-1} | 15.5 |
| | 3 | | | 86.4 | | | 1.80×10^{-1} | 15.6 |
| ^{59}Fe | 1 | 5.1 | 1.75 | 86.9 | 0.5 | 8 | 8.11×10^{-1} | 7.05 |
| | 2 | | | 87.3 | | | 8.11×10^{-1} | 7.08 |
| | 3 | | | 87.1 | | | 8.11×10^{-1} | 7.06 |
| ^{45}Ca | 1 | 5.0 | 1.75 | 88.4 | 0.5 | 8 | 6.76×10^{-2} | 0.124 |
| | 2 | | | 86.7 | | | 6.76×10^{-2} | 0.122 |
| | 3 | | | 87.1 | | | 6.76×10^{-2} | 0.122 |

図-3.3には ^{45}Ca の累積浸出量（時刻 t までの全浸出量 M_t を固化体内封入量 M_0 で除したもの）の経時変化の他に、一定期間中にセメント固化体から浸出した安定な $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度に対する放射性核種 ^{45}Ca の浸出量の比の値（浸出比）の経時変化が示してある。この浸出比はセメント固化体を構成するカルシウムと添加した ^{45}Ca とが均一に混合しておれば、本来一定になるはずであるが、 $3 \times 10^{-3} \sim 4 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{meq}$ の範囲で変動している。 ^{45}Ca はセメント

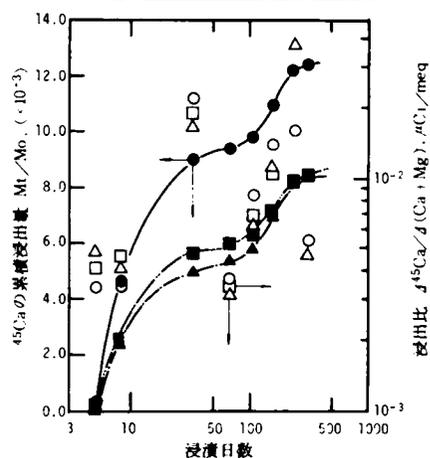


図-3.3 ^{45}Ca の模擬セメント固化体からの浸出

の粘りませ水に混合して用いたため、セメントを構成するカルシウムが主としてセメント水和物として結晶構造中に固定されると推定されるのに反して、 ^{45}Ca は主としてセメント固化体の間隙水中に保持されているものと考えられる。このため、安定な $\text{Ca} + \text{Mg}$ のセメント固化体からの浸出がセメントの溶解と間隙水の内部拡散によるのに対し、 ^{45}Ca の浸出は主として間隙水の内部拡散によって定まり、とりわけ浸出の初期においては両者の比が一定にならないものと思われる。浸出比が一定になるには更に長時間を要すると思われる。

実地層において、セメント固化体が地下水水質にどのような影響を及ぼすかを調べた研究報告は少ない。⁽⁵⁾ ただし、建築廃材の土砂・ガレキを大量に埋設したゴミ埋立場の周辺地下水の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度が有意に高くなっている事実が現地実測によって確かめられた例がある。⁽⁶⁾ 地下水が土壌あるいはセメント固化体と接触することによって、特に地下水中の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度が変化する現象については本章第5節、第6節でも詳しく検討する。一般には、セメント固化体との相互作用による地下水中 $\text{Ca} + \text{Mg}$ の濃度変化の方が、土壌との相互作用による濃度変化よりも数倍大きいようである。

(2) セメント固化体からの放射性核種の浸出

セメント固化体からの放射性核種の浸出および浸出機構については比較的よく研究されておりその成果も多く発表されている。^{(7)~(13)} 原子力発電所から排出される放射性核種のうち、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs および ^{60}Co のセメント固化体からの浸出現象については、すでに詳しく検討されている。ここではこれら以外の放射性核種すなわち、 ^{54}Mn 、 ^{59}Fe 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ および ^{65}Zn のセメント固化体からの浸出速度を得るために、模擬固化体を供試体を用いて浸出試験を実施した。試験方法は ^{45}Ca の浸出試験と同じである。模擬セメント固化体の作製条件を整理して表-3.4に、また各放射性核種の累積浸出量の経時変化を図-3.4に示す。これらの実験値から算出した各核種のセメント固化体からの浸出速度を整理して表-3.5に示す。表-3.5中 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs および ^{60}Co の浸出率は寺島⁽⁷⁾の実験データより算出した。浸出速度は固化体の単位浸出面積・単位時間当たり、セメント固化体への初期封入固化核種量の幾割が浸出するかで表示した。数値は初期100日間の平均値である。

寺島は放射性核種の浸出機構について詳しく検討し、 ^{60}Co の浸出速度がセメント固化体自体の溶解

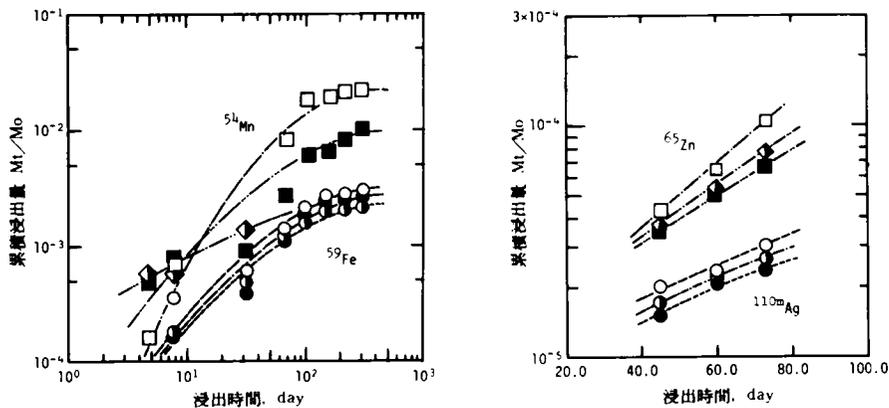


図-3.4 セメント固化体からの放射性核種の浸出

速度に律速され、 ^{137}Cs の浸出速度はセメント固化体の間隙水の内部拡散速度に律速され、また ^{90}Sr の浸出速度は初期の浸出段階では内部拡散速度に、後期の浸出段階ではセメント固化体自体の溶解速度に律速されると報告している。(10) この分類に従って、 ^{54}Mn 、 ^{59}Fe 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ および ^{65}Zn の浸出機構を分類すると、 ^{54}Mn と ^{59}Fe は内部拡散と固化体の溶解が律速する ^{90}Sr 型の浸出機構に、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ と ^{65}Zn とは固化体の溶解が律速する ^{60}Co 型の浸出機構に属するといえる。

3.2.3 地下水中無機塩による分配係数値の変化 (14)

日本の各地、計16箇所から採取した合計17種類の試料土壌を用いて、9種類の放射性核種 (^{90}Sr 、 ^{90}Y 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 、 ^{54}Mn 、 ^{65}Zn 、 ^{59}Fe 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ および ^{99}Mo) の分配係数値をバッチ法およびカラム法で測定した。使用した水道水の水質を表-3.1に、また試料土壌の物理的性質を表-3

.3に、放射性核種の性質を表-3.6に示す。表中 ^{90}Y は、 ^{90}Sr と永続平衡状態にある ^{90}Y を陽イオン交換樹脂 Amberlite IR-120B を用いて分離・調製したものである。核種を混合した水道水の pH 、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度等の水質因子は原則として化学薬品による調整を行わず、このような調整が必要な場合には、バッチ法に限り、土壌と水道水の混合比率を変えることによって目的を達した。本実験は、実施所において出現する pH 域、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度域での分配係数値の変化を知ることを目的にしている。バッチ法での土壌（風乾状態）と地下水との混合比率は $50 / 30 \sim 50 / 1$ (ml / g) の範囲で変化させた。 pH 値、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度の変化域は各々、約 $4.5 \sim 8.2$ 、 $0.4 \sim 6.1 \text{ meq} / \ell$ であった。

表-3.5 セメント固化体からの放射性核種の浸出速度

| 核種 | セメント固化体からの浸出速度 $1/\text{cm} \cdot \text{day}^{***}$ |
|---------------------------|--|
| ^{137}Cs * | 1.0×10^{-4} |
| ^{90}Sr * | 6.0×10^{-6} |
| ^{58}Co ** | 7.5×10^{-8} |
| ^{60}Co * | 7.5×10^{-8} |
| ^{54}Mn | 1.1×10^{-6} |
| ^{59}Fe | 3.5×10^{-7} |
| $^{110\text{m}}\text{Ag}$ | 7.1×10^{-9} |
| ^{65}Zn | 2.0×10^{-8} |

(註) * : 寺島の報告値(9)より算出
** : ^{60}Co のデータより推定
*** : 固化体単位表面積当り・初期封入量の幾割が1日当り浸出するかを示す。

表-3.6 実験に用いた放射性核種とその濃度条件一覧

| 核種 | 化学形 | 源液中の濃度 | |
|---------------------------|--------------------------------|--|--|
| | | 放射能濃度 $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ | 化学的濃度 Mole/liter |
| ^{90}Sr | $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ | $2.0 \times 10^{-3} \sim 7.0 \times 10^{-3}$ | $1.5 \times 10^{-10} \sim 5.3 \times 10^{-10}$ |
| ^{137}Cs | CsCl | $1.2 \times 10^{-3} \sim 2.7 \times 10^{-3}$ | $6.1 \times 10^{-10} \sim 1.4 \times 10^{-9}$ |
| ^{60}Co | CoCl_2 | $1.8 \times 10^{-4} \sim 7.3 \times 10^{-4}$ | $2.4 \times 10^{-11} \sim 9.7 \times 10^{-11}$ |
| ^{54}Mn | MnCl_2 | $3.6 \times 10^{-4} \sim 4.6 \times 10^{-4}$ | $3.5 \times 10^{-14} \sim 4.6 \times 10^{-14}$ |
| ^{65}Zn | ZnCl_2 | $1.8 \times 10^{-3} \sim 2.7 \times 10^{-3}$ | $2.5 \times 10^{-9} \sim 3.7 \times 10^{-9}$ |
| ^{59}Fe | FeCl_3 | $9.1 \times 10^{-4} \sim 1.3 \times 10^{-3}$ | $1.6 \times 10^{-9} \sim 2.3 \times 10^{-9}$ |
| $^{110\text{m}}\text{Ag}$ | AgNO_3 | $2.7 \times 10^{-4} \sim 5.9 \times 10^{-4}$ | $2.2 \times 10^{-12} \sim 4.8 \times 10^{-12}$ |
| ^{99}Mo | $(\text{NH}_4)_2 \text{MoO}_4$ | $9.1 \times 10^{-3} \sim 1.1 \times 10^{-2}$ | $2.2 \times 10^{-8} \sim 2.7 \times 10^{-8}$ |
| ^{90}Y | | $1.5 \times 10^{-3} \sim 2.2 \times 10^{-3}$ | $3.0 \times 10^{-14} \sim 4.4 \times 10^{-14}$ |

バッチ法によって測定した、各試料土壌についての分配係数值を表-3.7に示す。分配係数值は、同一の土壌についても溶液中の共存イオン濃度が変化するとそれに応じて変化するため、ここでは代表値として、実験の前後で液中の $C_a + M_g$ 濃度が変化しない場合の分配係数值を示した。表-3.7には標準酢酸アンモニウム法によって測定した試料土壌の陽イオン交換容量を併せて示した。

土壌と接触する水中の $C_a + M_g$ 濃度および pH と分配係数值との関係を各々表-3.8と表-3.9に示す。表中プラス記号は正の相関関係、つまり $C_a + M_g$ 濃度あるいは pH 値が増加するにつれて分配係数值が増加する場合を示しており、逆の場合つまり負の相関関係がある場合をマイナスの符号で、またいづれの相関があるか認められない場合をゼロの符号で示した。 pH の変化および $C_a + M_g$ 濃度の変化が小さい場合 (0.5 pH 以下、または 0.5 meq/l 以下) に行なった判断には、濃度の変化範囲が充分でないと思われるので、*印を付して区別した。

核種の分配係数值の変化が共存イオンの内、どのイオンによって支配されているとみなすのが妥当であるか、あるいはどのイオンに注目して分配係数值の変化を予測するのが妥当であるかを検討する。ここでは、すでに述べた多くの研究によって指摘されている共存無機イオンの内、 $C_a + M_g$ 濃度と pH とが及ぼす影響に注目する。 pH および $C_a + M_g$ 濃度に関する実験条件下では、これら水質因子のいづれか一方のみによって、各核種の全ての試料土壌に対する分配係数值の変化を説明するには無

表-3.7 分配係数の代表値(バッチ法による測定値)

| 土壌 | 交換容量 μeq/g | 分配係数值 kd, ml/g | | | | | | | |
|----|---------------|------------------|-------------------|------------------|------------------|------------------|--------------------|------------------|------------------|
| | | ⁹⁰ Sr | ¹³⁷ Cs | ⁶⁰ Co | ⁵⁴ Mn | ⁶⁵ Zn | ^{110m} Ag | ⁵⁹ Fe | ⁹⁹ Mo |
| A | 11.3 | 12 | 500 | 100 | 150 | 90 | 75 | 8 | 1 |
| B | 241.7 | 30 | 2800 | 150 | 2100 | 1000 | 100 | 500 | 140 |
| C | 55.6 | 40 | 2500 | 250 | 250 | 4000 | 300 | 100 | 40 |
| D | 169.5 | 65 | 3000 | 400 | 5000 | 8000 | 1000 | 500 | 6 |
| E | 67.9 | 700 | 5000 | 350 | 10000 | 1800 | 200 | 120 | 160 |
| F | 47.8 | 45 | 1200 | 250 | 30 | 1200 | 350 | 200 | 60 |
| G | 28.9 | 40 | 1000 | 200 | 500 | 500 | 10 | 5 | 5 |
| H | 117.9 | 270 | 1300 | 400 | 700 | 800 | 170 | 60 | 13 |
| I | 140.5 | 10 | 1000 | 20 | 70 | 200 | 200 | 250 | 400 |
| J | 246.0 | 500 | 7000 | 150 | - | 3500 | - | - | 200 |
| K | 60.3 | 10 | 200 | 10 | 50 | 20 | 20 | 5 | 20 |
| L | 149.0 | 60 | 8000 | 100 | 250 | 2200 | 100 | 1000 | 270 |
| M | 24.3 | 25 | 1500 | 200 | 14* | - | - | - | - |
| N | 27.1 | 15 | 300 | 180 | 800 | 1900 | 300 | 40 | 1.3 |
| O | 122.8 | 150 | 3000 | 400 | 2000 | 2000 | 400 | 250 | 8 |
| P | 38.6 | 25 | 1500 | 100 | 70 | 200 | 60 | 5 | 1.8 |
| Q | 200.1 | 70 | 2000 | 80 | 100 | 200 | 80 | 15 | 40 |

(注) *印は ⁵⁴Mn の代りに ⁵⁶Mn を用いたことを、また -印は未測定であることを意味する。

表 - 3.8 分配係数値と Ca + Mg 濃度との相関関係

| 土壌 | 分配係数 kd と Ca + Mg 濃度との間の相関関係の型 | | | | | | | |
|----|--------------------------------|-------------------|------------------|------------------|------------------|--------------------|------------------|------------------|
| | ⁹⁰ Sr | ¹³⁷ Cs | ⁶⁰ Co | ⁵⁴ Mn | ⁶⁵ Zn | ^{110m} Ag | ⁵⁹ Fe | ⁹⁹ Mo |
| A | - | - | - | - | - | - | - | - |
| B | - | - | - | - | 0 | - | 0 | - |
| C | + | + | + | 0 | + | 0 | + | + |
| D | - | - | - | - | - | - | - | - |
| E | 0 | + | + | 0* | + | 0 | 0* | + |
| F | 0 | + | + | 0 | + | + | + | + |
| G | 0* | + | 0* | - | - | - | 0* | 0* |
| H | + | + | + | + | + | + | + | - |
| I | 0* | 0* | 0* | 0* | 0* | + | + | + |
| J | + | 0* | + | - | + | - | - | - |
| K | 0 | 0 | - | 0 | 0 | 0 | - | 0 |
| L | 0 | + | + | 0 | + | 0 | + | + |
| M | - | 0 | - | - | - | - | - | - |
| N | - | 0 | - | - | - | 0 | 0 | - |
| O | - | - | - | - | - | - | - | - |
| P | - | - | - | - | 0* | 0 | 0 | + |
| Q | 0* | 0 | + | -* | 0 | 0* | + | 0 |

(註) +符号は kd と Ca + Mg 濃度との間に正の相関があること、つまり Ca + Mg 濃度の増加と共に kd も増加することを示す。-符号は逆の場合をまた 0 は相関がないことを意味する。*印は Ca + Mg 濃度の変化量が 0.5 meq/l 以下であることを示す。

表 - 3.9 分配係数値と pH 値との相関関係

| 土壌 | 分配係数 kd と pH 値との間の相関関係の型 | | | | | | | |
|----|--------------------------|-------------------|------------------|------------------|------------------|--------------------|------------------|------------------|
| | ⁹⁰ Sr | ¹³⁷ Cs | ⁶⁰ Co | ⁵⁴ Mn | ⁶⁵ Zn | ^{110m} Ag | ⁵⁹ Fe | ⁹⁹ Mo |
| A | 0 | -* | -* | -* | -* | -* | -* | - |
| B | + | + | + | + | 0* | 0* | 0* | + |
| C | + | + | + | + | + | + | 0 | + |
| D | -* | -* | -* | 0* | + | 0* | 0* | -* |
| E | + | 0* | + | 0* | + | + | 0 | + |
| F | + | + | + | 0 | + | + | + | + |
| G | + | + | + | + | + | + | + | -* |
| H | + | + | + | + | + | + | + | 0* |
| I | + | + | + | 0 | + | + | - | + |
| J | + | + | + | - | + | - | - | 0 |
| K | + | + | + | 0 | + | 0 | 0 | 0 |
| L | + | + | + | 0 | + | 0 | + | + |
| M | 0 | -* | + | + | - | - | - | - |
| N | -* | 0 | -* | 0* | - | - | 0 | - |
| O | -* | -* | 0* | 0* | + | 0* | 0* | 0* |
| P | 0 | 0* | 0* | 0* | + | -* | 0* | -* |
| Q | + | + | + | + | 0 | + | 0 | 0 |

(註) +符号は kd と pH とが正の相関を有する、つまり pH の増加に伴って kd も増加することを意味する。-符号は逆の場合を 0 は相関がないことを示す。また *印は pH の変化量が 0.5 以下であることを示す。

理があることが解る (表-3.8, 表-3.9 参照)。また、これらの水質変化が分配係数値に及ぼす影響のパターンも同一ではない。それ故、全ての土壌に対して、例えば式(2-17)~式(2-20)のような、同一の相関回帰式を適用することはできない。

すでに分類したカルシウム過剰土壌と不足土壌の代表として、各々試料土壌 A と K (表-3.3 参照) とを選定し、⁹⁰Sr の分配係数値の pH 値、Ca + Mg 濃度による変化を図-3.5 および図-3.6 に示す。これらの図からもわかるように、実験に用いた17種類の土壌については、カルシウム過剰土壌では、⁹⁰Sr の分配係数値は Ca + Mg 濃度との相関が強く、またカルシウム不足土壌では pH 値との相関が

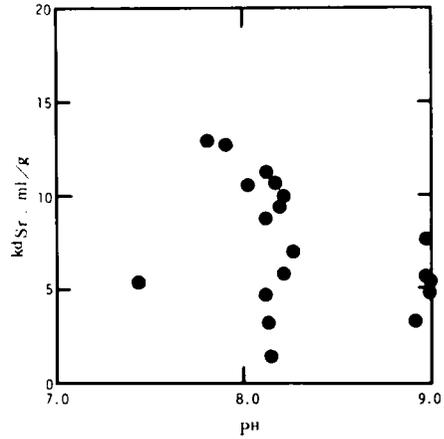
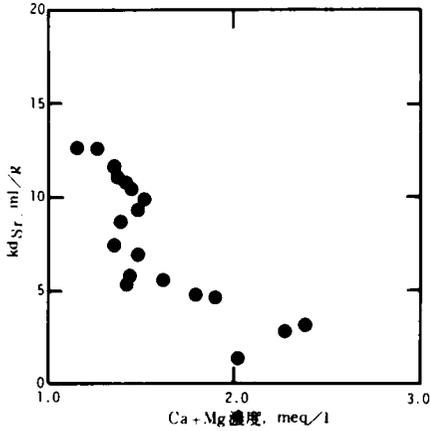
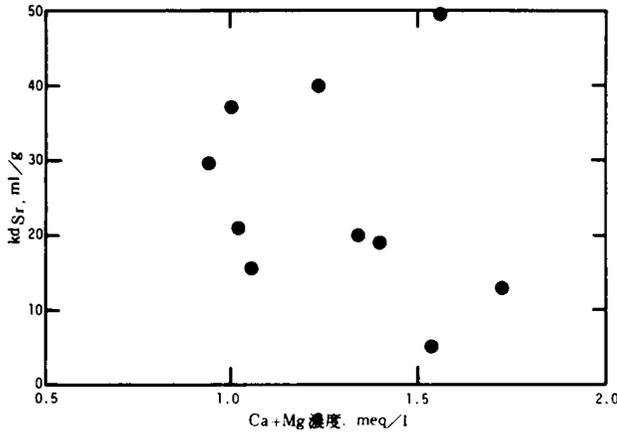


図-3.5(A) ^{90}Sr 分配係数値 (kd_{Sr}) の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度との相関 (試料土壌: A)

図-3.5(B) ^{90}Sr 分配係数値 (kd_{Sr}) の pH との相関 (試料土壌: A)



強い。Ranzon⁽¹⁵⁾は酸性土壌、アルカリ土壌ともに ^{90}Sr の分配係数値と pH 値との相関が強いことを報告しているが、そのような原則が適用できない場合があることがわかる。試料土壌 B, C, D, H, J, N および O では両水質因子のいずれとも相関が認められるが、やはり前述の一般原則は適用することができる。同じ原則が ^{90}Sr の他に、

図-3.6(A) ^{90}Sr 分配係数値 (kd_{Sr}) と $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度との相関 (試料土壌: K)

^{137}Cs , ^{60}Co , ^{65}Zn および ^{54}Mn についてもほぼ成立する。これら多くの核種の分配係数値の変化を $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度, pH 値のいずれか一方のみで予測しようとする立場は、分配係数値変化の機構を解明する観点からすれば極めて問題が多いといわざるを得ないが、分配係数値の変化の大略を予測するに

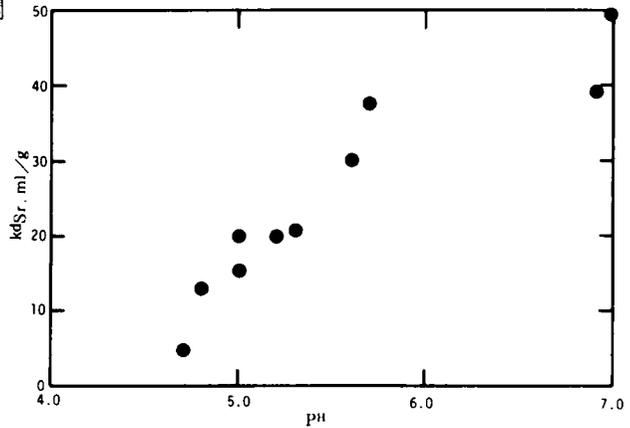


図-3.6(B) ^{90}Sr 分配係数値 (kd_{Sr}) と pH との相関 (試料土壌: K)

は有用である。

上記5種以外、すなわち ^{110m}Ag , ^{59}Fe および ^{99}Mo については次の事項を指摘しておく必要がある。すなわち、後述するように ^{110m}Ag , ^{59}Fe はある種の土壌-地下水系においてはイオン状では存在しない場合があること、また本実験で用いた ^{99}Mo は $(\text{NH}_4)_2\text{MoO}_4$ を用いた(表-3.6 参照)ため地下水中では MoO_4^{--} の陰イオンで存在すると思われること、つまり $C_a + M_g$, pH のように陽イオンとの相関に注目することに無理があると考えられること等である。

$C_a + M_g$ 濃度の増加に伴って、核種の分配係数値が減少する現象は共存イオンによる影響として式(2-11)、式(2-12)からも容易に理解できる。 $C_a + M_g$ 濃度の増加に伴う分配係数値の減少傾向は図-3.5 (A) のように下に凸な曲線で示されることが多いが、必ずしも式(2-11)のように $C_a + M_g$ 濃度に逆比例するとは限らない。 $C_a + M_g$ 濃度の増加に伴って分配係数値が増加する現象は共存イオンとの競合吸着反応に注目しては説明することができない。通常は $C_a + M_g$ 濃度の増加に伴って pH も増加するため、 $C_a + M_g$ 濃度の増加による分配係数値の減少よりも pH の増加に伴う分配係数値の増加の方が土壌によっては著るしくなるためであると考えられることもできよう。本実験の範囲においては、いずれも明確な結論を得ることはできない。

表-3.9 よりわかるように pH の増加に伴って分配係数値が増加する (pH 値の増加に対して正の相関がある) 現象が認められる。この原因としては、(1) pH の増加に伴って、核種の水中での存在状態が変化し、土壌に対する吸着性が大きくなること、(2) pH の増加に伴って核種が水酸化物等の化学的に安定な化合物を作って沈降しやすくなること等々が考えられるが、本実験の範囲内では推論の域を出ることができない。

3.2.4 その他の環境因子による分配係数値の変化

(1) 核種・土壌による変化

表-3.7 より、放射性核種の分配係数値は、試料土が同じであっても、核種によって大きく変化することがわかる。 ^{137}Cs , ^{65}Zn および ^{54}Mn の分配係数値は試料土壌によらず、他の核種に比較して大きく、 ^{90}Sr および ^{99}Mo の分配係数値は比較的小さい。 ^{90}Sr , ^{137}Cs および ^{60}Co の分配係数値を比較すると、これら3核種については、ほぼ試料土壌によらず $kd_{\text{Cs}} > kd_{\text{Co}} > kd_{\text{Sr}}$ の大小関係が成立している。

^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co および ^{65}Zn の分配係数値は、試料土壌による変化の程度が小さいが ^{54}Mn , ^{110m}Ag , ^{59}Fe , ^{99}Mo は試料土壌による変化の程度が大きい。後者のグループに属する4核種の内 ^{110m}Ag , ^{59}Fe は非イオン状で存在する可能性があること、 ^{99}Mo は陰イオンの形態で使用したこと、についてはすでに述べた。

吸着材が合成イオン交換樹脂である場合には、放射性核種の分配係数値の大小は第2章で紹介した熱力学的考察から理論的に推定することができる。市販の陽イオン交換樹脂に対する各核種の吸着性の順位(分配係数値の大きさの順位)は、 $\text{Sr} > \text{Ca} > (\text{Zn}, \text{Mn}, \text{Co}), \text{Ag} > \text{Cs}, \text{H}$ であるとされている。この大小関係は吸着材が土壌である場合の大小関係とは必ずしも一致していない。このことは合成イオン交換樹脂について発展させられたイオン交換の理論を、核種の土壌との相互作用を説明するためにそのままでは適用できないことを示している。

(2) 陽イオン交換容量との相関

一般に土壤は陽イオン交換材としての性質を有しており、本実験で用いた放射性核種は⁹⁹Moを除くと、実験条件下の水中では陽イオンとして存在する場合が多いと思われる。⁽¹⁶⁾ 図-3.7は、標準酢酸アンモニウム法により測定した試料土壤の陽イオン交換容量と⁹⁰Srの分配係数値との相関を、表-3.7の実験データを用いて図示したものである。両者の間には必ずしも強い相関があるとはいえないが、⁹⁰Srの分配係数の概略値を推定する場合には、同図より得られる次の回帰式を用いることができよう。

$$\log kd_{Sr} = 0.0098(C.E.C.) + 1.0$$

…………… (3-4)

ここに、 kd_{Sr} : ⁹⁰Srの分配係数値 (ml/g)

C.E.C. : 土壤の陽イオン交換容量 (μeq/g)

この回帰式は、交換容量が小さい領域ほど精度がよい。⁹⁰Sr以外の核種については、分配係数値と陽イオン交換容量との間に相関が認められない。

(3) 通水速度の影響

試料土壤AおよびMを充填した飽和カラムを用いて、カラム法によって測定した分配係数値を実験条件と共に整理して表-3.10に示す。表中、^{110m}Agおよび⁵⁹Feについては非イオン状態で存在する可能性があるため、参考値として分配係数値を示した。

表-3.10中、試料土壤Aの⁹⁰Srに関するカラム法による分配係数値は、Ca + Mg濃度が大きくなる程小さくなる傾向が認められる。また通水速度に注目すれば、通水速度が大きくなる程分配係数値が小さくなる傾向が認められる。すでに述べたように試料土壤Aはカルシウム過剰土であるから、その分配係数値はpHよりもCa + Mg濃度との相関が強く、Ca + Mg濃度の増加によって分配係数値は減少する。一方、一般に通水速度が大きくなれば放射性核種の土壤との接触時間が短くなることから分配係数値は小さくなることが期待される(式(2-21)参照)。分配係数値が通水速度の影響をうけて変化するか否かは、実験条件に用いる通水速度の大きさと共に更に詳しく検討しなければならない。実地層における地下水の流速は、特殊な場合を除けばほぼ0~40m/dayの範囲にあると考えられる。

(4) 飽和度の影響

試料土壤Aを充填した不飽和カラムを用いて、カラム法によって測定した分配係数値を実験条件と共に整理して表-3.11に示す。同表をみると、飽和状態(S=1)で測定された分配係数値 kd_s よりも不飽和状態(0 < S < 1)で測定された分配係数値 kd_u の方が大きいことが伺える。さらに、⁹⁰Srについて kd_u と kd_s との間には次式が成立している。

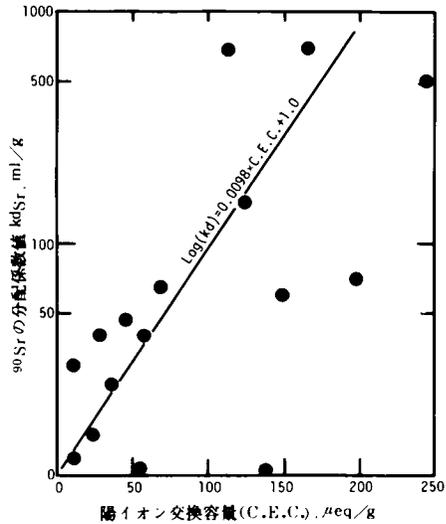


図-3.7 ⁹⁰Srの分配係数値と土壤の陽イオン交換容量との相関

表-3.10 飽和土壤カラムによって測定した核種の分配係数値および実験条件一覧

| 核種 | 土壤カラム | | | 土壤 | 流入溶液 | | | 分配係数 kd ml/g |
|--------------------|----------|---------|----------|----|----------|----------------------|-----------------|--------------------|
| | 高さ mm | 重量 g | 空隙率 % | | 飽和度 % | pH | 放射能濃度 μCi/ml | |
| ⁹⁰ Sr | 15 | 22.4 | 37.1 | M | - | 2.9×10 ⁻³ | 2.93 | 6.7 |
| ⁶⁰ Co | 16 | 10.0 | 36.3 | M | 0.23 | 3.0×10 ⁻² | 11.3 | 18.8 |
| ¹³⁷ Cs | 18 | 10.0 | 43.4 | M | -0.12 | 6.5×10 ⁻³ | 11.2 | 409 |
| ⁵⁶ Mn | 130 | 96.3 | 44.1 | M | -0.16 | 5.3×10 ⁻³ | 7.52 | 5.0 |
| ⁶⁵ Zn | 16 | 10.0 | 36.3 | M | -0.29 | 1.2×10 ⁻² | 12.1 | 148 |
| ⁵⁹ Fe | 75 | 50.0 | 32.1 | M | 7.40 | 7.9×10 ⁻⁴ | 1.59 | * |
| ^{110m} Ag | 24 | 15.0 | 36.3 | M | 9.50 | 4.0×10 ⁻⁴ | 2.10 | * |
| ⁹⁰ Sr | 59 | 50.0 | 33.1 | A | 7.18 | 2.7×10 ⁻³ | 1.97 | 4.9 |
| ⁹⁰ Sr | 115 | 75.0 | 36.0 | A | - | 2.4×10 ⁻³ | 0.16 | 13.6 |
| ⁹⁰ Sr | 96 | 57.0 | 40.7 | A | 6.92 | 3.7×10 ⁻³ | 0.15 | 6.7 |
| ⁹⁰ Sr | 154 | 84.6 | 45.3 | A | 7.30 | 1.2×10 ⁻³ | 2.63 | 3.0 |
| ⁶⁰ Co | 70 | 50.0 | 44.9 | A | 7.06 | 2.9×10 ⁻³ | 2.20 | 25.4 |
| ¹³⁷ Cs | 20 | 20.0 | 32.8 | A | 7.20 | 2.5×10 ⁻³ | 1.48 | 695 |
| ⁹⁹ Mo | 14 | 80.0 | 44.5 | A | 6.67 | 4.9×10 ⁻³ | 2.86 | 0.37 |

(註) 一印は測定値がないことを示す。

*印は分配係数を定義できないことを示す(本文参照)。

$$kd_s = S \cdot kd_u$$

$$\dots\dots (3-5)$$

ただし、 $1 \geq S > 0.65$
 ここに、 S はカラムに充填した土壤間隙の水による飽和度である。地層の飽和度が分配係数に及ぼす影響について報告した例は少なく、影響の有無の確認を始めとして今後解明すべき問題である。Routson (17)は kd_u と kd_s との差異は、各々の分配係数値の測定誤差の範囲内にあり、両者の差異が有意であるとは認め難いとの報告を紹介している。不飽和状態での核種の分配係数値について理論的に検討するためには、まず不飽和状態での土壤水分と土壤との接触の機構、土壤水分の移行機構を明らかにしなければならない。土壤水分の移行機構は、一般には、飽和度によって変化する。土壤水分の移動については本章第6節で詳しく検討する。

表-3.11を得る実験では地層の飽和度を、地層に供給する模擬廃液の供給速度で制御している。それ故、地層の飽和度が大きいと

表-3.11 不飽和土壤カラムによって測定した⁹⁰Srの分配係数値および実験条件一覧

| 核種 | 土壤カラム | | | | | 流入溶液 | | | | 分配係数 | |
|------------------|----------|---------|----------|----------|----|--------------|------|----------------------|------------------------------|-------------------------|---------------------------|
| | 高さ mm | 重量 g | 空隙率 % | 飽和度 % | 土壤 | 総硬度 meq/l | pH | 放射能濃度 μCi/ml | 流速 ml/cm ² min | kd _u ml/g | s.kd _u ml/g |
| ⁹⁰ Sr | 46.0 | 23.4 | 47.4 | 65.3 | A | 1.16 | 7.06 | 2.0×10 ⁻² | 0.12 | 7.3 | 4.8 |
| ⁹⁰ Sr | 42.0 | 22.5 | 44.5 | 71.8 | A | 1.16 | 7.06 | 2.0×10 ⁻² | 0.64 | 6.8 | 4.9 |
| ⁹⁰ Sr | 52.5 | 29.2 | 42.5 | 79.4 | A | 1.16 | 7.06 | 2.0×10 ⁻² | 0.72 | 6.4 | 5.1 |
| ⁹⁰ Sr | 59.0 | 50.0 | 33.1 | 100.0 | A | 1.58 | 7.18 | 3.0×10 ⁻³ | 1.97 | 4.9 | 4.9 |

(註) 飽和度は土壤カラムの空隙体積中に占める土壤水分の容積比として定義されている。

きは供給速度も大きくなっている。供給速度（通水速度）が大きくなると分配係数値が小さくなる傾向が認められていることはすでに述べた。

分配係数値が飽和度あるいは通水速度のいずれに依存して変化するのは別に検討する必要がある。

(5) 核種の存在状態の影響

試料土壌Aについて、バッチ法で測定した ^{90}Y の分配係数値の pH による変化および $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度による変化を図-3.8に示す。

^{90}Y は永続平衡状態にある ^{90}Sr + ^{90}Y 溶液をAmberlite IR-120 B樹脂を充填したカラムに通水し、 ^{90}Sr を除去することによって調製した。(18)

本研究で用いた放射性核種（表-3.6）の内では ^{90}Y 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ および ^{59}Fe が高 pH 領域で非イオン状態で安定に存在することが報告されている。(19)これらの核種を含む地下水を土壌カラムに通水すると、核種がイオン状態で存在する場合には、カラム流出液中濃度(C)が通水量の増加と共にカラム流入水中の核種濃度(C_0)に等しくなるのに対し、これらの核種の流出率(C/C_0)は1.0にはならず、水の pH に応じた一定値に漸近する傾向が認められる(次節図-3.14 参照)。(18),(20)表-3.10に示した試料土壌Mについての

カラム実験においては、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ および ^{59}Fe の流出率は各々50%、30%であった。図-3.8で

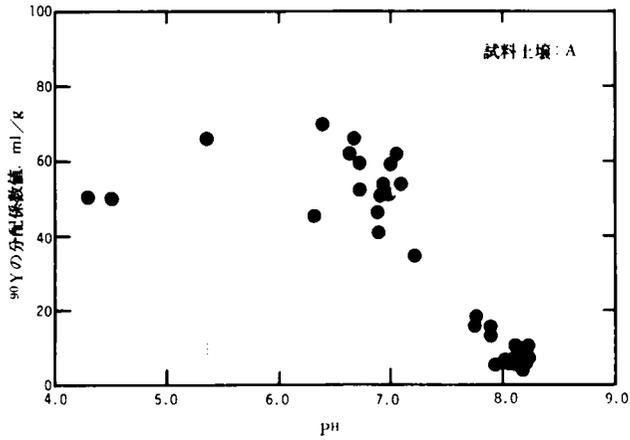


図-3.8 (A) ^{90}Y の分配係数値(kd_Y)の pH との相関

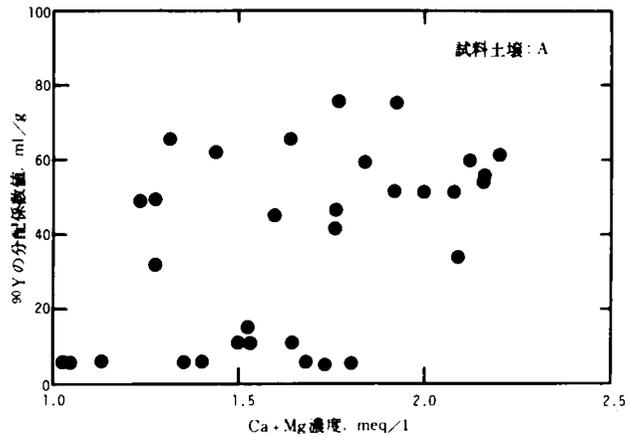


図-3.8 (B) ^{90}Y の分配係数値(kd_Y)の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度との相関

用いた ^{90}Y は、限外濾過試験によって、 pH が2.0以下ではほぼ100%がイオン（陽イオン）状態で、 pH が9.0以上ではほぼ100%が非イオン状態で存在することが確かめられている(図-3.9 参照)。図-3.8 (A)は非イオン状態の ^{90}Y は、イオン状態の ^{90}Y に比べると、土壌に吸着され難いことを示している。この現象は ^{90}Y の土壌カラム流出曲線が流出率1.0に漸近せず、 pH の増加と共により大きな平衡流出率に漸近する現象と一致している。また図-3.8 (B)より pH が4.3~7.5の範囲では ^{90}Y の分配係数値と $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度との間には相関が認められないことがわかる。

(6) 測定方法の影響

カラム法（開放系）とバッチ法（閉鎖系）による分配係数値が一致しない現象が認められる。Routson⁽¹⁷⁾は ^{90}Sr の分配係数値について、 ^{90}Sr と土壌との交換反応に競合するマクロイオンが、カラム法では Na^+ イオン、バッチ法では Ca^{++} イオンであることから、カラム法による分配係数値がバッチ法による分配係数値よりも大きくなると報告している。表-3.10の2種類の試料土壌について ^{90}Sr のカラム法による分配係数値をバッチ法による分配係数値と比較すると、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度の影響を補正しても（試料土壌Aについては図-3.5(A)を補正曲線として使用）、両者に有意な差異は認められない。他の核種についても比較すると、一般にカラム法による分配係数値はバッチ法による分配係数値にはほぼ等しいか小さいといえる。

3.2.5 ま と め

本節で得られた結論を整理するとつぎのようになる。

- (1) 放射性核種のセメントからの浸出について、 ^{54}Mn および ^{59}Fe は固化体での内部拡散と固化体の溶解が律速する ^{90}Sr 型の浸出機構に、また ^{110m}Ag と ^{65}Zn とは固化体の溶解が律速する ^{60}Co 型の浸出機構に属する。放射性核種のセメント固化体からの浸出速度は表-3.5の通りである。
- (2) 地下水が土壌と接触すると、地下水中の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度が変化する。 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度が増加傾向にあるか否かは、飽和指数を用いて判断することができるが、どの程度の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度が生じるかは、飽和指数値の変化量の推定値から予測するのが妥当である。試料土壌は、地下水との相互作用に注目して、カルシウム過剰土壌と不足土壌とに分けることができる。
- (3) 放射性廃棄物をセメント固化して地中処分すると、地下水中の無機塩濃度は土壌だけでなくセメント固化体との相互作用を通じて大きく変化する。その変化の様相については本章第5節・第6節でも詳しく検討するが、一般には、例えば $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度の変化についていえば、セメント固化体との相互作用による変化の方が、土壌との相互作用による濃度変化よりも数倍大きいようである。
- (4) 放射性核種の分配係数値は核種によって大きく変化する。比較的半減期の長い ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、および ^{60}Co の分配係数値 kd は、実験に用いた17種の試料土壌については、土壌の種類に関係なく、 $kd_{\text{Cs}} > kd_{\text{Co}} > kd_{\text{Sr}}$ の順に小さくなる。
- (5) 放射性核種の分配係数値は共存イオンによって大きく変化する。分配係数値は $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度の増加および pH 値の減少と共に小さくなることが多い。分配係数値の変化を予測するには、まず試料土壌がカルシウム過剰土壌であるか不足土壌であるかを判断し、カルシウム過剰土壌の場合には $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度に注目して分配係数値の変化を測定し、不足土壌の場合には pH に注目して分配係数値の変化を測定するのが有効である。この原則は ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 、 ^{65}Zn および ^{54}Mn に適用することができる。全ての土壌・核種について共通な型の実験式を得ることは不可能に近いから、現段階では、要求される場合に応じて分配係数値を実測するのが工学的な方法であるといえる。
- (6) ^{90}Sr の分配係数値と試料土壌の陽イオン交換容量との間には式(3-4)で示される正の相関関係がある。他の核種については相関が認められない。
- (7) 飽和カラム・不飽和カラムを用いて測定した ^{90}Sr の分配係数値には差異が認められた。2種類の分配係数値の間には実験条件下で式(3-5)で表わされる関係がある。

- (8) 実験に用いた放射性核種のうち、 ^{90}Y 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、および ^{59}Fe は水中で非イオン状態で安定に存在する場合がある。これらの核種が非イオン状態で存在する場合には、核種の土壌カラムからの流出率 (C/C_0) は1.0にはならず、 pH 値に応じた平衡値に漸近する。 ^{90}Y の土壌への吸着性は非イオン状 ^{90}Y よりもイオン状 ^{90}Y の方が大きい。
- (9) カラム法による分配係数値はバッチ法による分配係数値に比べて等しいか小さい。
- (10) 通水速度の増加に伴って分配係数値が小さくなる傾向が認められた。通水速度と分配係数値との関係を明らかにするためには更に詳しい検討が必要である。

3.3 非イオン状放射性核種の地中移動

すでに述べたように、放射性物質の地中移動に関する研究は、放射性物質がイオン状態で存在する場合あるいは、イオン状態とみなしうる場合について進められたものが主であった。放射性物質が非イオン状態で存在する場合には、それらの物質はイオン状の物質よりも速く地中を移動しうるということが実験的に示唆されている。^{(20),(21)} 本節では、溶液中で非イオン状態で存在すると考えられている多くの放射性核種のうち ^{90}Y (^{90}Sr の娘核種)に注目して、まず ^{90}Y の水溶液中での存在状態を確認し、ついでその存在状態の差異が ^{90}Y の地中での移動特性にどのような影響を及ぼすかについて実験的に検討する。

3.3.1 実験方法

(1) ^{90}Y の分離

Ca 型に調整した陽イオン交換樹脂Amberlite IR-120 Bを充填した硬質ガラス製カラムに、永続平衡状態にある $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ の水道水溶液(放射能濃度 $9.1 \times 10^{-4} \sim 1.8 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{ml}$)を通水して ^{90}Sr と ^{90}Y とを分離した。分離が完全であるかどうかは、濾液中の放射能濃度を一定時間毎に測定し、得られた減衰曲線が ^{90}Y の理論減衰曲線に一致するかどうかによって確認した。なお、分離に際しては分離効率をよくするために $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ 水溶液の pH を1N-HClを用いてあらかじめ約4.0に調整した。

分離した ^{90}Y は、ただちに1N-NaOHを用いて pH 2~10の所定の値に pH 調整を行ない、室温で約24時間放置した後に実験に使用した。実験に使用した ^{90}Y は放射能濃度が $2.7 \times 10^{-4} \sim 3.2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ の範囲にあった。

Amberlite IR-120 B樹脂カラムを通過した水道水の水質は、 pH が3.4、 Ca 、 Mg は0 Mol/l、 Cl^- イオンは $7.89 \times 10^{-4} \text{ Mol}/\text{l}$ 、 SO_4^{2-} イオンは $1.82 \times 10^{-4} \text{ Mol}/\text{l}$ であった。

(2) 存在状態の確認

実験に用いた水溶液中での ^{90}Y の存在状態を濾過法によって確かめた。濾過には濾過容量15mlの加圧式濾過装置を用い、加圧にはゲージ圧1.0~2.0気圧の窒素ガスを用いた。濾過膜はミリポア社製各孔径(0.025 μ ~1.2 μ)のミリポア・フィルターの他、分子分画量が各々1,000、25,000、100,000の限外濾過膜を使用した。

濾別する濾液量は10 mlとし、非イオン状の ^{90}Y とイオン状の ^{90}Y の分離には主として分子分画量が

が25,000の限外濾過膜を用い、膜を透過しない分率を非イオン状(コロイド)の ^{90}Y であるとした。

(3) ^{90}Y の土壌及びイオン交換樹脂への収着* 特性-バッチ法-

Ca 型に調整した陽イオン交換樹脂Amberlite IR-120 B 1gを容量100mlの硬質ガラス製マイエルにとり、これに pH を調整した ^{90}Y 溶液50mlを注いだ。ゴム栓をし、約24時間放置した後に上澄み液中の ^{90}Y 濃度を計数して、次式により ^{90}Y の樹脂への分配係数值 kd を算出した。

$$kd = \frac{V}{W} \frac{C_0 - C_e}{C_e}$$

ここに、 V : ^{90}Y 溶液の容積(50ml)

W : イオン交換樹脂の重量(g)

C_0 : 上澄み液中の初期 ^{90}Y 濃度($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)

C_e : 上澄み液中の平衡時 ^{90}Y 濃度($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)

日本原子力研究所東海研究所構内から採取した土壌(有効径0.51mm、均等係数2.0、密度2.65g/cm³、標準酢酸アンモニウム法による陽イオン交換容量11.3 $\mu\text{eq}/\text{g}$)1g~10gを同じく硬質ガラス製マイエルにとり、これに pH を調整した ^{90}Y 溶液50mlを注いだ。ゴム栓をし、約24時間放置した後上澄み液中の ^{90}Y 濃度を計数して、上式により ^{90}Y の試料土壌への分配係数值 kd を算出した。水溶液中の ^{90}Y が試料土壌に強く収着される程、 kd 値は大きくなるため、ここでは ^{90}Y の収着性の大小を判断する指標として kd 値を用いる。

(4) ^{90}Y の土壌およびイオン交換樹脂への収着特性-カラム法-

硬質ガラス製カラムに試料土壌、イオン交換樹脂(陽イオン交換樹脂、陰イオン交換樹脂、交換基をもたない樹脂)を各々、所定量、樹脂間隙が水で飽和されるように充填した。このカラムに、 pH を調整した ^{90}Y の水溶液を供給し、一定時間毎にカラム流出液中の ^{90}Y 濃度を計測して ^{90}Y の流出曲線を得た。実験に用いたイオン交換材の性質を整理して表-3.12に、また実験条件を表-3.13に示す。

表-3.12 用いたイオン交換材の性質一覧

| イオン交換材 | 名称 | 型 | 有効径 (mm or mesh) | 陽イオン交換容量 (meq/l) |
|-----------------------------|--------------------|----|---------------------|---------------------|
| Natural sand | | Ca | 0.51mm | 0.011 |
| Cation exchange resin | Amberlite IR-120 B | Ca | 0.45-0.60mm | 4.3* |
| Anion exchange resin | Dowex 1, X-8 | Cl | 50-100mesh | 3.5* |
| Resin with no exchange site | | - | 100-200mesh | 0* |

* 公称値である。

* 吸着材と吸着される物質との反応機構が不明の場合、あるいは当該反応を定量化するのが困難である場合に、イオン交換、吸着、内部吸着、吸蔵、化学反応等多くの機構を包括的に表現するために“収着(sorption)”という語が使われることがある。本論文では反応機構を特定・確認することができないという意味でこの語“収着”を用いる。

3.3.2 実験結果

(1) ^{90}Y の存在状態

ミリポア・フィルターを用いて測定した ^{90}Y の粒度分布を図-3.9に示す。同図をみるとpH7.7とpH10.1とでは ^{90}Y の粒度分布に有意な差異は認められないが、pH3.3では他の場合に比べてフィルターを通過する ^{90}Y の通過分率が大きいことがわかる。分子分画量25,000の限外濾過膜を用いて ^{90}Y 溶液を限外濾過し、濾膜を通過する ^{90}Y をイオン状 ^{90}Y 、通過しない ^{90}Y を非イオン(コロイド)状 ^{90}Y とみなして整理した結果を図-3.10に示す。分子分画量100,000の濾膜と25,000の濾膜との間には ^{90}Y の膜透過率に有意な差異

表 3-13 カラム実験の実験条件一覧

| 核種 | 土壌カラム | | | カラム流入液の性質 | | | | 参照 | |
|----------------------|-------------------|---------|--------|-----------|------|------------------------------------|---------------------------------|------|---------------|
| | イオン交換材 | 高さ (mm) | 重量 (g) | 空隙率 (%) | pH | 放射能濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$) | 化学的濃度 (Mol/l) | | 非イオンの存在分率 (%) |
| ^{90}Y | Amberlite IR-120B | 40.0 | 2.03 | - | 3.00 | 1.3×10^{-3} | 2.7×10^{-14} | 37.7 | 0.66 |
| ^{90}Y | Amberlite IR-120B | 35.0 | 1.60 | - | 6.70 | 5.8×10^{-4} | 1.2×10^{-14} | - | 0.80 |
| ^{90}Y | Dowex 1, X-8 | 46.0 | 1.86 | - | 2.09 | 3.5×10^{-3} | 7.2×10^{-14} | 3.6 | 0.60 |
| ^{90}Y | Dowex 1, X-8 | 46.0 | 2.63 | - | 9.79 | 2.0×10^{-3} | 4.1×10^{-14} | 98.6 | 0.66 |
| ^{90}Y | RWENS* | 47.0 | 3.99 | - | 2.88 | 1.3×10^{-3} | 2.7×10^{-14} | 24.4 | 0.99 |
| ^{90}Y | RWENS* | 35.0 | 1.69 | - | 9.54 | 1.4×10^{-3} | 2.9×10^{-14} | 85.8 | 0.70 |
| ^{90}Y | Natural sand | 87.0 | 57.0 | 34.7 | 3.08 | 1.7×10^{-3} | 3.5×10^{-14} | 30.4 | 0.07 |
| ^{90}Y | Natural sand | 92.0 | 57.1 | 38.2 | 4.56 | 2.4×10^{-3} | 4.9×10^{-14} | 54.2 | 0.16 |
| ^{90}Y | Natural sand | 90.0 | 57.0 | 36.9 | 6.70 | 2.1×10^{-3} | 4.3×10^{-14} | - | 0.08 |
| ^{90}Y | Natural sand | 85.0 | 57.0 | 33.1 | 7.60 | 3.2×10^{-3} | 6.6×10^{-14} | 98.1 | 0.12 |
| ^{90}Sr | Natural sand | 90.0 | 57.0 | 36.9 | 9.82 | 2.5×10^{-3} | 5.1×10^{-14} | 96.5 | 0.21 |
| ^{90}Y + | Natural sand | 96.0 | 57.0 | 40.7 | 6.92 | 3.2×10^{-3} | 6.6×10^{-14} | - | 0.15 |

Note ; * RWENS stands for Resin With No Exchange Site.
— means no data.

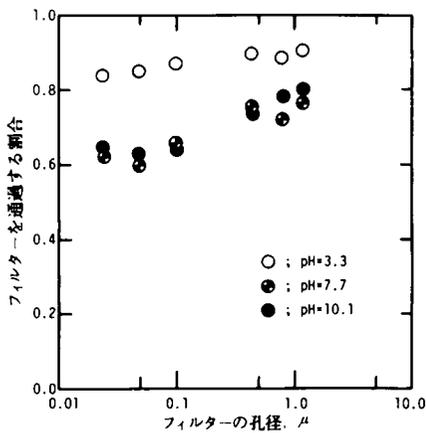


図-3.9 限外濾過試験による⁹⁰Yの粒度分布

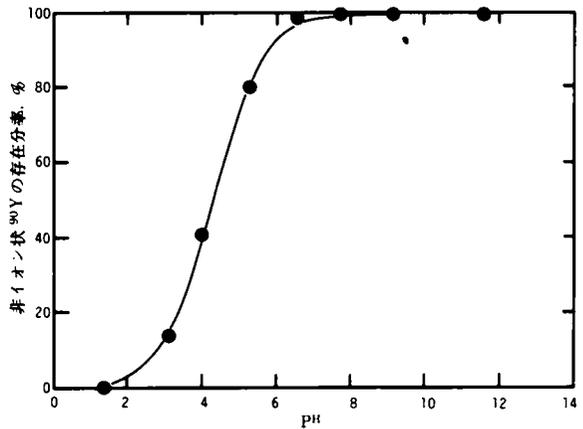


図-3.10 pHによる非イオン状⁹⁰Y存在分率の変化

が認められたが、分子分画量1,000の濾膜と25,000の濾膜との間には有意な差が認められなかった。同図をみると、非イオン状の⁹⁰Yの存在分率はpH 2.0～pH 7.0の範囲で0%～100%の範囲に変化することが伺える。

⁹⁰Yの分子分画量1,000、25,000、100,000の限外濾過膜による限外濾過試験では濾膜の分子分画量によらず、ほぼ全量(98%～99%)の⁹⁰Srが濾膜を通過した。

(2) ⁹⁰Yの収着特性

陽イオン交換樹脂Amberlite IR-120 Bおよび試料砂に対する⁹⁰Yの収着性を、⁹⁰Yの分配係数を指標に用いて整理して、おのおの図-3.8 (A)、図-3.11に示す。同図より、溶液のpH値が小さくなるほど、砂および樹脂に対する⁹⁰Yの分配係数は大きくなることがわかる。しかし、吸着剤が砂である場合と陽イオン交換樹脂である場合とでは、pHによる分配係数の

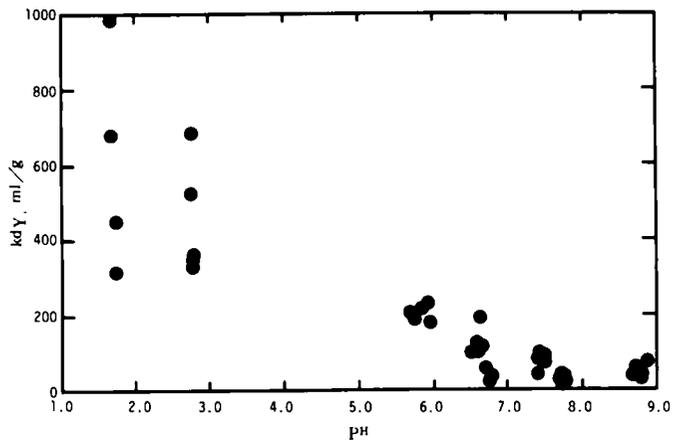


図-3.11 ⁹⁰Yの分配係数値とpHとの相関 (Amberlite IR-120 Bの場合)

の変化の様相が異なる。すなわち、陽イオン交換樹脂Amberlite IR-120Bに対する⁹⁰Yの分配係数値はpHの減少と共にほぼ連続的に大きくなる(図-3.11参照)のに対し、試料砂に対する⁹⁰Yの分配係数値はpHがほぼ6.5～8.0の範囲ではpHの減少と共に増加するが、その他のpH域ではほぼ一定値をとる(図-3.8 (A)参照)。ただし、バッチ法によって測定した試料砂の分配係数値が変動するpH域6.5～8.0は、コロイド状⁹⁰Yの存在分率が大きく変化するpH域2.0～6.5(図-3

.10 参照) とは一致していない。

放射性核種がイオン状で存在する場合には、分配係数値が水溶液中の共存イオン、例えば $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度と強い相関を示すことが多いが、⁽¹⁴⁾ pH が 4.3 ~ 7.5 の範囲では ^{90}Y の分配係数値と $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度との間には相関が認められなかった (図-3.8 (B) 参照)。

(3) ^{90}Y の移動特性

陽イオン交換樹脂、陰イオン交換樹脂、交換基を持たない樹脂の各々を充填した硬質ガラス製カラムに、イオン状 ^{90}Y の存在分率の大きな低 pH 値および非イオン状 ^{90}Y の存在分率の大きな高 pH 値に pH 調整した ^{90}Y 水溶液を供給して得た、 ^{90}Y の流出曲線を各々図-3.12、図-3.13 に示す。低 pH 域における ^{90}Y の流出曲線は充填材が陰イオン交換樹脂の場合と、交換基を持たない樹脂の場合とでは有意な差が認められず、また充填材が陽イオン交換樹脂である場合の流出曲線とは明らかに異なっている (図-3.12 参照)。イオン状態で存在する ^{90}Y が陽イオン交換樹脂に極めてよく交換吸着されていることから、低 pH 域のイオン状 ^{90}Y は陽イオンとして存在するといえよう。

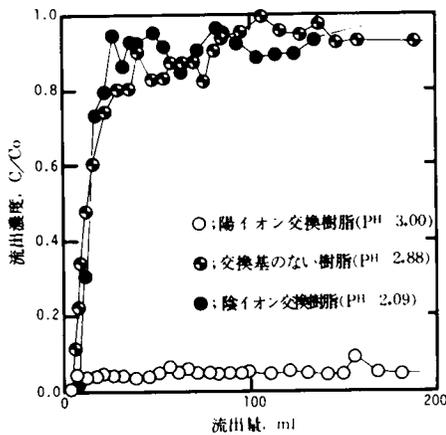


図-3.12 ^{90}Y の樹脂カラム流出曲線 (低 pH 領域)

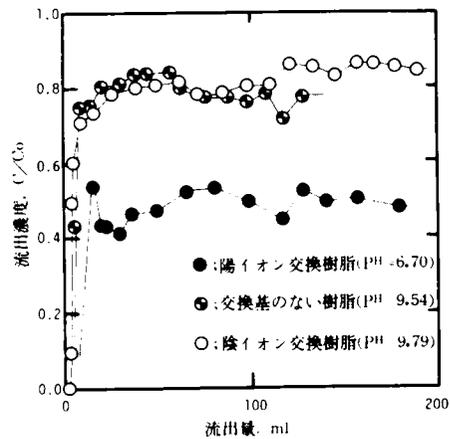


図-3.13 ^{90}Y の樹脂カラム流出曲線 (高 pH 領域)

一方、高 pH 域における ^{90}Y の流出曲線は、充填材が陽イオン交換樹脂の場合の pH 値のみ 6.70 であり、他に比べると低いいため厳密な比較に用いることはできないものの、樹脂の差異による流出曲線の差異は著るしくはない。とりわけ、充填材が陰イオン交換樹脂の場合と、交換基をもたない樹脂の場合とでは有意な差異が認められない (図-3.13 参照)。これらのことから、高 pH 域での非イオン状 ^{90}Y は電荷を有しないものと推定できる。

試料土壌を充填した硬質ガラス製カラムに pH 値を調整した ^{90}Y 水溶液を通水して得た流出曲線を図-3.14 に示す。同図より、水溶液の pH 値が大きくなり非イオン状 ^{90}Y の存在分率が大きくなるに従って (図-3.10 参照)、 ^{90}Y の土壌カラムからの流出率 C/C_0 が大きくなることわかる。

試料土壌を充填した硬質ガラス製カラムに、 pH を 9.82 に調整した $^{90}\text{Y} + \text{HTO}$ 水溶液を通水して得た ^{90}Y 、 HTO の流出曲線を正規確率紙上にプロットして図-3.15 に示す。通水量が増加しても ^{90}Y の流出率 C/C_0 は 1.0 にならない (図-3.14 参照) ために、 ^{90}Y の流出曲線と HTO の流出曲線とは、通水量が大きい領域では一致しないが、図-3.15 をみると、 ^{90}Y および HTO の土壌カラム

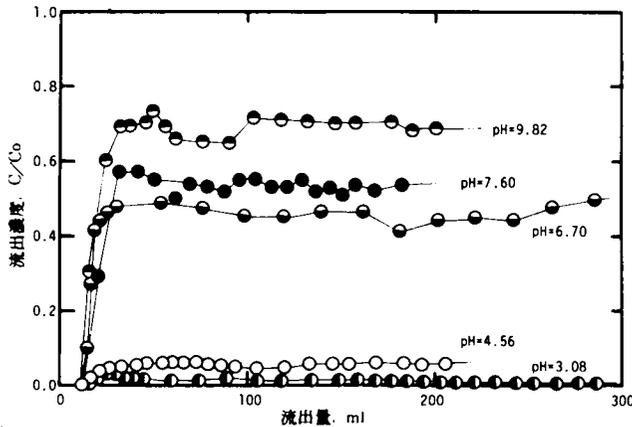


図-3.14 ^{90}Y の土壌カラム流出曲線

からの初期流出パターンには有意な差異が認められないことがわかる。すなわち、高 pH 域での ^{90}Y の初期流出のパターンは水のトレーサーである HTO の初期流出パターンとはほぼ同じであり、このことは高 pH 域での ^{90}Y が試料土壌に吸着され難い性質を有することを意味する。

試料土壌を充填した硬質ガラス製カラムに pH を6.92に調整した永続平衡状態にある $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ 水溶液を通水して得た ^{90}Sr 、 ^{90}Y の流出曲線を図-3.16に示す。通水量の増加に伴い、 ^{90}Sr の流出率 C/C_0 は1.0に漸近するが、 ^{90}Y の流出率は1.0に漸近しないことがわかる。なお、 ^{90}Sr および ^{90}Y のカラム流出液中濃度は、カラム流出直後および永続平衡成立(約2週間)後に測定した全 β 線放射能計数率と ^{90}Sr 、 ^{90}Y の計数効率とを用いて計算によって推定した。

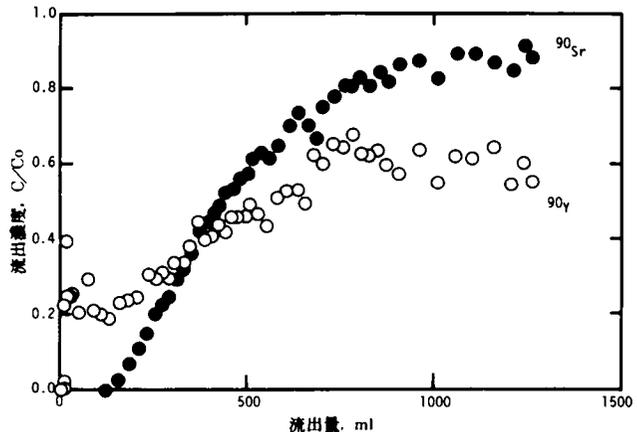


図-3.16 ^{90}Sr および ^{90}Y の土壌カラム流出曲線の比較

3.3.3 結果の考察

実験条件下での ^{90}Y の存在形態は pH によって大きく変化する。溶液の pH 値が低くなるほど、限外濾過膜を通過する ^{90}Y の存在分率が大きくなる(図-3.10参照)。逆に pH 値が大きくなるにつれて、限外濾過膜を通過しない ^{90}Y の存在分率が大きくなり、この ^{90}Y の大きさは用いた濾膜の公称分子分画量から判断すると、その大部分が分子量25,000相当以上であると推定される。しかもその ^{90}Y の粒度分布は pH が7前後より大きい場合には pH によって変化しないであろうことが推定される(図-3.9参照)。

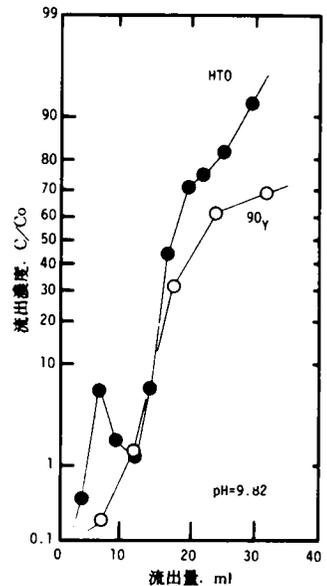


図-3.15 HTO および ^{90}Y の土壌カラム初期流出の比較

イオン状⁹⁰Yのイオン交換樹脂への吸着特性(図-3.12)から判断すると、⁹⁰YはpHが低い水溶液中で陽イオンとして存在するといえる。このことは、Pourbaix⁽¹⁶⁾が熱力学データを用いて純水中にある⁹⁰Yの化学的存在形態を推定した結果と一致している。一方、非イオン状の⁹⁰Yは帯電しているとはいえない。ただし、⁹⁰Yの樹脂カラム流出率が高pH域においても1.0にならないこと(図-3.13参照)は、非イオン状⁹⁰Yがイオン交換以外の何らかのメカニズムによって樹脂に収着されることを意味している。高pH域の⁹⁰Yの土壌カラムからの流出率は流出開始後溶液のpHに応じた一定値にすみやかに漸近し、以後はほとんど増加しない(図-3.14参照)。例えば、pH 9.82の⁹⁰Yの流出率は溶液の流出量が増加してもほぼ0.7より大きくならない。このことはカラムに流入した⁹⁰Yの約30%がすみやかに土壌に収着されたことを意味する。この収着速度が遅い場合には、⁹⁰Yの流出率はゆるやかに増加しついに1.0に漸近する筈である。それ故、この収着速度は比較的速いと推定することができる。ただし、収着のメカニズムは明らかでない。

試料土壌と⁹⁰Yの相互作用についても同様の現象をみることができた。⁹⁰Yの試料土壌への分配係数値は低pH域では大きく、pHが増加するにつれて小さくなり、pH値が約6を越えるとほとんど変化しない。低pH域で分配係数値が大きいのは陽イオンとして存在する⁹⁰Yが土壌にイオン交換されたためであり、また高pH域つまり⁹⁰Yが非イオン状となり土壌との相互作用のメカニズムとしてイオン交換反応を考えることができなくなっても、なお分配係数値がゼロにならないのは、非イオン状の⁹⁰Yが物理吸着等のメカニズムにより土壌に収着されるからであろうと思われる(図-3.8参照)イオン状の⁹⁰Yは強く土壌に交換吸着されて土壌カラム内での移動速度が遅く、溶液のpH値が増加して非イオン状⁹⁰Yの存在分率が大きくなるにつれて、カラムからの流出率も大きくなる(図-3.14参照)。しかも非イオン状⁹⁰Yの初期流出パターンと水のトレーサーとして用いたHTOの初期流出パターンとの間には有意の相違を認めることができず(図-3.15参照)、このことは非イオン状⁹⁰Yのある分率がほぼ水と同速度で移動するとみなしうることを意味している。限外濾過の結果から、ほぼ全量の⁹⁰Yが非イオン状で存在すると思われるpH領域においても、カラムに流入する⁹⁰Yの全量が流出することはなく、なおある分率の⁹⁰Yは土壌に保持される。イオン状の⁹⁰Yは全て土壌に吸着されると仮定すると、図-3.10および図-3.14より、非イオン状態で存在する⁹⁰Yの内土壌に収着されない⁹⁰Yの存在分率を推定することができる。推定結果を図-3.17に示す。すなわち、非イオン状⁹⁰Yの内土壌に収着されない⁹⁰Yの分率はpH値の増加と共に増加している。このことは、pHの増加と共に、非イオンという存在状態は同じであっても、⁹⁰Yの存在形態(化学形)が変化していることを伺わせる。

通常の地下水のpH範囲(5.5~7.5)では、地下水中に浸出した⁹⁰Yはその全量が土壌と吸着・脱着をくり返しつつ移動することもなく、また全量が土砂と何ら反応せず移動することもない。その移動パターンは、核種がイオンとして存在する場合のパターン(図-3.16、⁹⁰Srの流出パターンを参照)とは明らかに異なる。非イオン状放射性核種の地中移動を正確に予測するためには、核種の土砂との相互作用がイオン交換反応であるとする従来の理論とは異なる理論を検討する必要がある。

本研究によって得た実験結果からは非イオン状⁹⁰Yが⁹⁰Yだけでできている真コロイドであるか、あるいは、水中に共存する不溶性不純物に⁹⁰Yが吸着した吸着コロイドであるかは断定できない。すでに述べたように、このような⁹⁰Yの存在形態はpHと共に変化するものと考えられる。仮にpHの

増加によって生成する非イオン状の ^{90}Y が ^{90}Y の水酸化合物 $^{90}\text{Y}(\text{OH})_3$ であるとすれば、 $\text{Y}(\text{OH})_3$ の溶解度積は 8×10^{-23} であり、⁽²²⁾本実験に用いた ^{90}Y の濃度は $10^{-13} \sim 10^{-14} \text{ Mol/l}$ であることから $^{90}\text{Y}(\text{OH})_3$ が水中で熱力学的に安定に存在し始める pH 値は11.3～11.6となる。図-3.10によると非イオン状の ^{90}Y の存在分率は pH が約6.5付近でほぼ1.0となる。このことから、水中で安定に存在する ^{90}Y の化学種が水酸化物であれば、容解度積から推定される真コロイドの生成 pH 域よりはるかに低い pH 域で非イオン状コロイドが存在することになり、結局 ^{90}Y は吸着コロイドとして存在すると推定することができる。ただし、極低濃度域においては溶解度積一定の法則が成立しないと考えられている例も紹介されている⁽²³⁾こと、上の推論が妥当であるためには、他の多くの化学種についても考慮する必要があることなどから、非イオン状で存在する ^{90}Y が吸着コロイドであるか否かは断定することができない。

本研究では、放射平衡状態にある $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ から ^{90}Sr を除去するために陽イオン交換樹脂カラムを用いた。陽イオンとして存在する ^{90}Sr を樹脂層に固定して ^{90}Y を得る方法は、 ^{90}Y を得る有効な方法である。ただし、分離前にイオン状で存在した ^{90}Y があれば、それらは当然ながら樹脂層中に固定され、濾液中での非イオン状 ^{90}Y とイオン状 ^{90}Y の存在比率は熱力学平衡状態での存在比率とは異なる可能性がある。本研究では、分離後約24時間放置して実験に用いた。環境中での非イオン状 ^{90}Y の挙動を論じる場合に放置時間24時間が妥当であるかどうかは別に検討する必要があると思われる。

^{90}Y についての実験結果からも推定できるように、放射性核種がイオン状で存在しない場合であっても、問題になる土壌と地下水とを用いて例えば土壌カラム通水実験を実施すれば、得られた流出曲線から、土壌に保持される核種の分率と保持されない分率とを知ることができる。従って、前者の分率については核種がイオン状で存在すると仮定して展開された理論を用いてその地中での移動を、また後者の分率については核種が地下水と同速度で移動するとみなして、地中での移動を推定・評価することができる。^{(21),(24)} 本論文では、このような便宜的方法によって、非イオン状核種の地中移動を評価することにする。

3.3.4 ま と め

本節で明らかになった結論を整理するとつぎのようになる。

(1) 水溶液中での極低濃度の ^{90}Y の存在状態は溶液の pH によって大きく変化する。低 pH 域ではほとんどの ^{90}Y が陽イオンとして、また高 pH 域では帯電しない非イオン状で存在する。分子分画量25,000の限外濾過膜による濾別試験の結果、溶液の pH が2.0～7.0の間で非イオン状 ^{90}Y の存在分率は0～100%の範囲に変化した。

(2) イオン状の ^{90}Y の陽イオン交換樹脂および試料土壌への収着性は大きい。非イオン状 ^{90}Y の樹

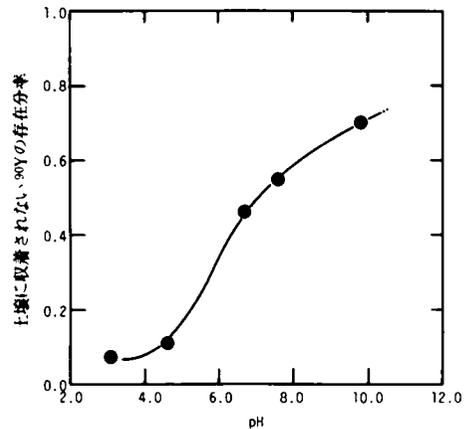


図-3.17 土壌に収着されない ^{90}Y の存在分率の pH との相関

脂および試料土壌への収着性はイオン状⁹⁰Yに比べると小さいがゼロではない。ある分率の非イオン状⁹⁰Yは試料土壌にほとんど収着されず、残りの分率は急速に試料土壌に収着されると考えることができる。非イオン状⁹⁰Yの内土壌に収着される⁹⁰Yの存在分率はpHが増加するにつれて小さくなる傾向が認められる。ただし、収着のメカニズムは明らかではない。

(3) 通常の地下水のpH範囲では大部分(約80%あるいはそれ以上)が非イオン状、残りがイオン状として存在するものと思われる。イオン状の⁹⁰Yおよび非イオン状⁹⁰Yの一部は土壌に収着・保持されるため、地層中を移動し難いが、残りの非イオン状⁹⁰Yは地層中をほぼ水と同じ速度で移動する。地層中をほぼ地下水と同速度で移動する非イオン状⁹⁰Yの挙動を予測するために、従来の理論をそのままの形で適用することはできない。核種の存在形態とその反応特性を考慮して新しい理論について検討する必要がある。

(4) ただし、土壌カラムを用いて、土壌に保持される核種の分率と保持されない分率とを実測すれば、前者に従来の理論を用い、後者に従来の理論において分配係数値がゼロであることににより、便宜的にはあるが、地中での移動を評価することができる。

(5) 非イオン状⁹⁰Yが真コロイドであるか、吸着コロイドであるかは、本研究からは判定できない。非イオン状⁹⁰Yが水酸化物コロイド(真コロイド)であるとすれば、本実験で確認した⁹⁰Yコロイドは溶解度積定数より推定されるpHより小さなpHで安定に存在することになる。さらに詳しい検討が必要である。

3.4 イオン状放射性核種の地中移動

ここでは、まず単一の放射性核種が地下水に混入している場合について、当該放射性核種が地中をどのように移動するかを、カラム実験によって実験的に検討する。ついで、保健物理学上重要と考えられる⁶⁰Co, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Csの各核種が同時に地下水に含まれている場合の、地中移動特性について実験的に検討し、さらに個々の核種の流出曲線を第2章で紹介した井上の理論とFrontal analysisとによって予測すると共に、尚理論の適用性について論ずる。本節で実験に用いる試料土壌は表-3.3中の土壌Mである。

3.4.1 単一核種の移動

(1) 実験方法

本項で行なう実験には試料土壌Mと現地で採取した地下水とを用いた。土壌Mの性質については表-3.3に示した。試料土壌を硬質ガラス製カラムに充填して作製した土壌カラムに、単一種の放射性核種を混合した地下水を通水して、放射性核種の流出曲線を得た。カラム流出液の一定量を一定時間毎に採取し、赤外線ランプ下で蒸発乾固した後2πガスフローカウンターで放射能濃度を計測・定量した。採用したカラム実験の実験条件を整理して表-3.14に示す。

実験に際しては、放射性核種の土壌カラム内での移動に影響を及ぼすであろう共存イオンの濃度の内Ca + Mg濃度、pHおよび酸消費量(pH5)を測定した。また、放射性核種の移動速度と地下水の移動速度との差異の程度を実験的に明らかにするため、塩素イオンをトレーサーに用いて地下水の土壌カラム流出曲線を測定した。

表-3.14 カラム実験の実験条件一覧(試料土壌M)

| 核種 | 土壌カラム | | | 流入溶液 | | | | 分配係数 k _d ml/g | 参照 | |
|--------------------|----------|---------|----------|--------------|------|-------|----------------------|--------------------------------|------|----------------|
| | 高さ mm | 重量 g | 空隙率 % | 総硬度 meg/l | pH | 飽和指数 | 放射能濃度 μCi/ml | | | 化学的濃度 Mol/l |
| ⁴⁵ Ca | 132 | 95.0 | 36.2 | 0.32 | 6.00 | -2.75 | 1.0×10 ⁻² | 1.1×10 ⁻⁴ | 2.10 | 図-3.18(A) |
| ⁴⁵ Ca | 135 | 95.0 | 36.1 | 2.09 | 7.51 | -0.23 | 9.8×10 ⁻⁴ | 6.8×10 ⁻⁴ | 2.40 | 図-3.18(B) |
| ⁴⁵ Ca | 130 | 95.0 | 35.2 | 1.95 | 9.71 | 1.74 | 9.8×10 ⁻⁴ | 6.4×10 ⁻⁴ | 1.93 | 図-3.18(C) |
| ⁶⁵ Zn | 26 | 15.0 | 41.2 | 3.27 | 8.10 | 0.39 | 1.7×10 ⁻² | 2.3×10 ⁻⁹ | 12.1 | 図-3.19 |
| ⁵⁶ Mn | 130 | 96.3 | 44.1 | 2.33 | 7.72 | -0.16 | 5.3×10 ⁻³ | 3.0×10 ⁻⁷ | 7.52 | 図-3.20 |
| ⁶⁰ Co | 16 | 10.0 | 36.3 | 1.93 | 8.10 | 0.23 | 3.0×10 ⁻² | 4.0×10 ⁻⁹ | 11.3 | 図-3.21 |
| ⁸⁹ Sr | 15 | 22.4 | 37.1 | - | - | - | 2.9×10 ⁻³ | 2.2×10 ⁻¹⁰ | 2.93 | 図-3.22 |
| ¹³⁷ Cs | 18 | 10.0 | 43.4 | 2.47 | 7.75 | -0.12 | 6.5×10 ⁻³ | 3.3×10 ⁻⁹ | 11.2 | 図-3.23 |
| ¹³⁷ Cs | 24 | 14.0 | 36.0 | - | - | - | 1.4×10 ⁻² | 7.1×10 ⁻⁹ | 2.27 | 図-3.24 |
| ^{110m} Ag | 24 | 15.0 | 36.3 | - | 9.50 | - | 4.0×10 ⁻⁴ | 3.2×10 ⁻¹² | 2.10 | * 図-3.25 |
| ⁵⁹ Fe | 75 | 50.0 | 32.1 | - | 7.40 | - | 7.9×10 ⁻⁴ | 1.4×10 ⁻⁹ | 1.59 | * 図-3.26 |

* 分配係数を定義できないことを意味する。
- 未測定

(2) 実験結果と考察

① ⁴⁵Ca の流出曲線

地下水中に多量に存在し、しかも放射性核種の地中移動に主要な影響を及ぼすであろうCaイオンの移動特性を把握するために測定した⁴⁵Caの流出曲線を図-3.18に示す。図中には、地下水のトレーサーとして用いたCl⁻イオンの流出曲線その他、安定元素であるCa+Mg濃度および式(3-2)で定義される飽和指数I_tの経時変化を同時に示してある。

図-3.18(A),(B),(C)は各々土壌カラム流入液の飽和指数I_tが負、零、正の場合について測定した⁴⁵Caの流出曲線である。これら3つの流出曲線には、流出初期における⁴⁵Ca濃度の増加パターンに差異は認められないが平衡流出濃度には著しい差異が認められる。すなわち、I_t<0の場合には、⁴⁵Caの流出濃度C/C₀はすみやかに1.0に漸近するのに対し、I_t≧0の場合にはC/C₀≧0.9、I_t>0の場合にはC/C₀≧0.75となり、溶液中のCa濃度が炭酸カルシウムに関する飽和平衡濃度を越える度合いが大きい程(I_tが大きい程)、平衡流出濃度C/C₀が小さくなる傾向がある。⁴⁵Caが化学的に安定な化合物を形成して土壤相へ移行しているといえる。この傾向は、すでにみたように、pHの減少と共に平衡流出濃度C/C₀が小さくなる⁹⁰Yの流出曲線(図

-3.14参照)の傾向と類似している。ただし、⁴⁵Caと⁹⁰Yとで流出濃度が小さくなる機構が同じであるとは限らない。図-2.2でみたように、放射性核種の内には、Caの沈降・溶解に影響されてその地中移動の特性を大きく変えるものがある。それ故、実地層における放射性核種の移動特性を把握するためには、当該地層において地下水中のCa濃度が増加する傾向にあるか減少する傾向にあるかを確認しておく必要があると思われる。

② ⁶⁵Zn の流出曲線

⁶⁵Znの流出曲線を、塩素イオン、Ca+Mg濃度、飽和指数I_tの経時変化と共に図-3.19に示す。

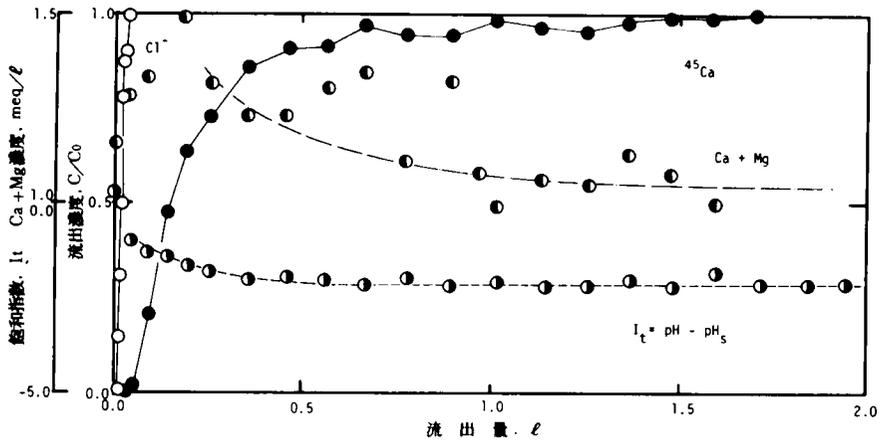


図-3.18 (A) ^{45}Ca の土壌カラム流出曲線 ($I_t < 0$ の場合)

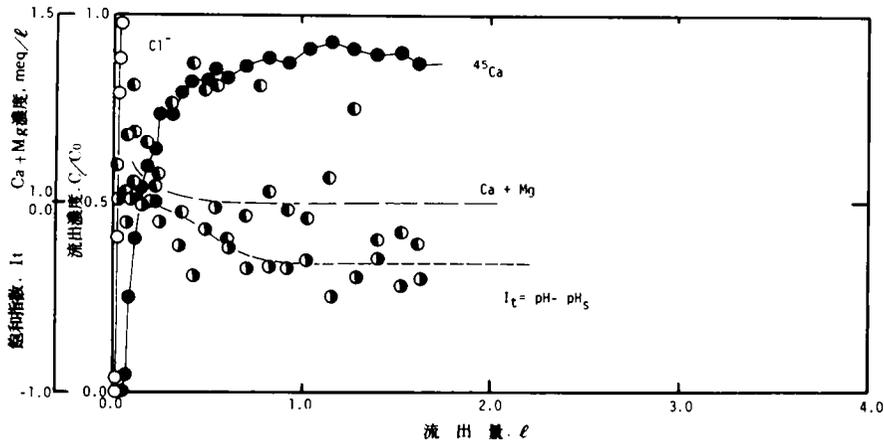


図-3.18 (B) ^{45}Ca の土壌カラム流出曲線 ($I_t \approx 0$ の場合)

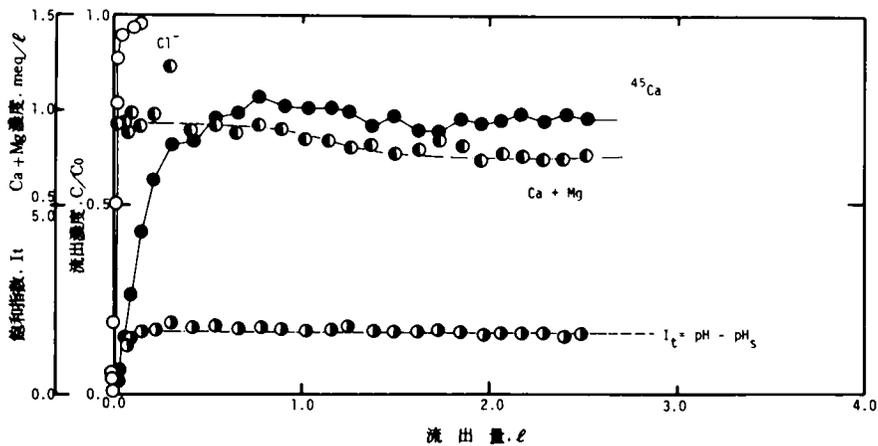


図-3.18 (C) ^{45}Ca の土壌カラム流出曲線 ($I_t > 0$ の場合)

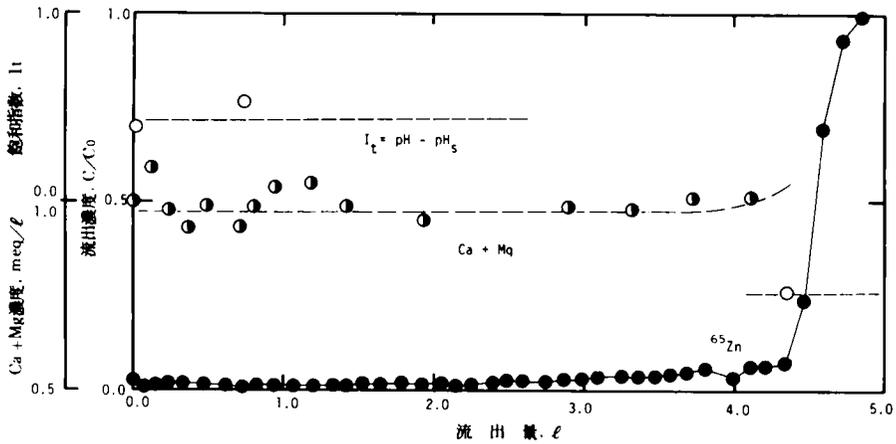


図-3.19 ^{65}Zn の土壤カラム流出曲線

図-3.19の ^{65}Zn 流出曲線は、図-2.2の曲線No. 3と同じものである。その機構は明らかではないが、 ^{65}Zn の土壤カラム内での挙動が、カラム内での $\text{Ca} + \text{Mg}$ の挙動によって大きな影響を受けることは明らかである。図-3.19は最初 $I_t = 0.39$ の地下水を通水していたが、カラム流出水中に ^{65}Zn を検出できないため、通水量が4.0 ℓを越えた後に $I_t = -0.51$ の地下水を通水して得られた流出曲線である。 ^{45}Ca の流出初期の濃度増加は I_t の符号によって影響されないことを述べた。 ^{65}Zn については、流出初期の濃度増加についても I_t の符号に応じて著しい変化をみせている(図-2.2参照)。図-3.19中通水量が4.2 ℓ付近から始まる ^{65}Zn の濃度増加曲線は $I_t = -0.18$ の場合に得られた流出曲線(図-2.2曲線No. 1)とほぼ同一である。

③ ^{56}Mn の流出曲線

^{56}Mn の流出曲線を、塩素イオン、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度、飽和指数 I_t の経時変化と共に図-3.20に示す。他の核種は全て無担体で使用したが、 ^{56}Mn は安定な Mn $3.0 \times 10^{-7} \text{ Mol}/\ell$ を担体として有する状態で使用した。

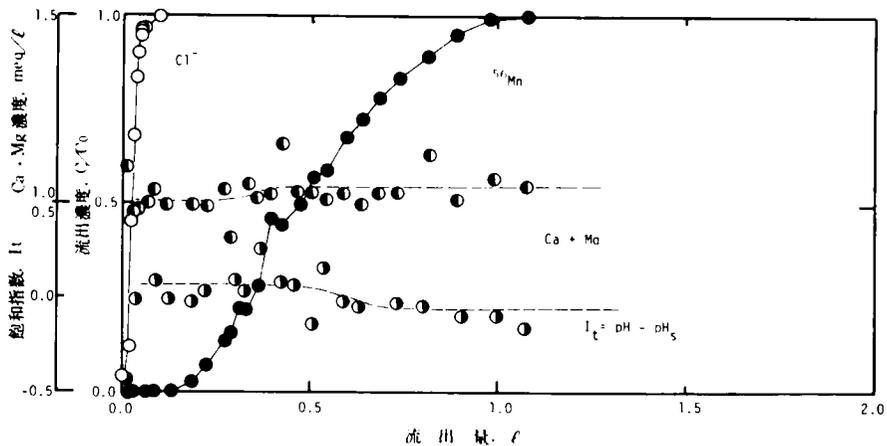


図-3.20 ^{56}Mn の土壤カラム流出曲線

④ ^{60}Co の流出曲線

^{60}Co の流出曲線および地下水のトレーサーとして用いた塩素イオンの流出曲線を図-3.21 に示す。

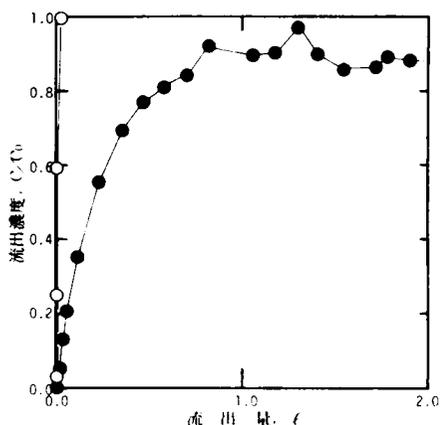


図-3.21 ^{60}Co の土壌カラム流出曲線

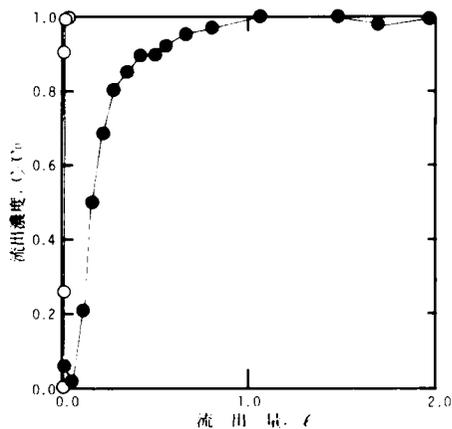


図-3.22 ^{89}Sr の土壌カラム流出曲線

⑤ ^{89}Sr の流出曲線

^{89}Sr の流出曲線および塩素イオンの流出曲線を図-3.22 に示す。

⑥ ^{137}Cs の流出曲線

^{137}Cs の流出曲線および塩素イオンの流出曲線を図-3.23、図-3.24 に示す。図-3.24 では、通水量が4.4 l に達した時刻に約8時間通水を休止した。この間に土壌間隙水中の ^{137}Cs と土壌粒子との反応が進んだため、同条件で通水を再開しても、カラム流出液中の ^{137}Cs 濃度は不連続に低下している。 ^{137}Cs と土壌との相互反応の内、主要な反応は、他の多くのイオン状核種の反応がイオン交換反応であると考えられるのに対し、 ^{137}Cs イオンが土壌粒子の結晶構造中へ浸入し、保持固定される反応であるといわれている。このように、土壌粒子表面でのイオン交換反応の反応速度に比べ、土壌粒子内での内部拡散の速度が律速するような、放射性核種の地中移動を論ずる場合には、特に実地層

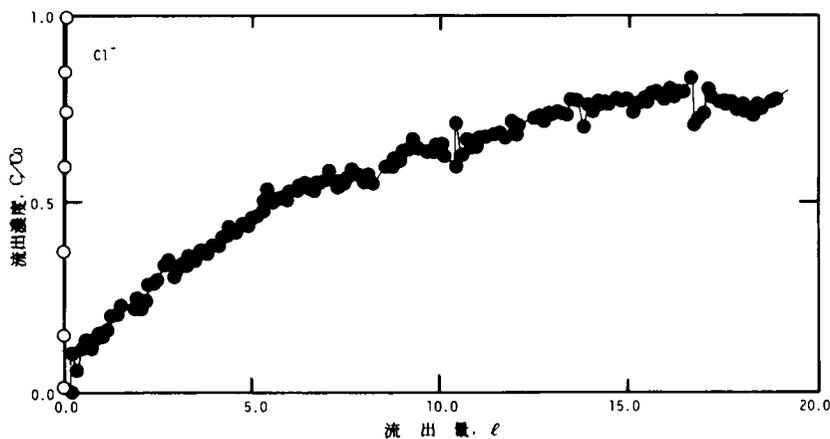


図-3.23 ^{137}Cs の土壌カラム流出曲線

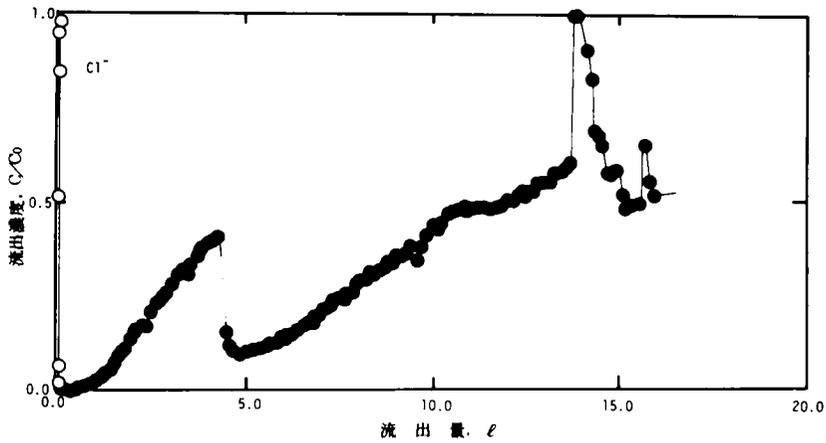


図-3.24 ^{137}Cs の土壌カラム流出曲線

における地下水の流速が速く核種と土壌との接触時間が十分に保証されない場合には、当該核種の土壌と地下水との間での分配反応が常に平衡状態にあるという仮定が成立しない場合がありうる。

⑦ ^{110m}Ag の流出曲線

^{110m}Ag の流出曲線を図-3.25 に示す。同図に陽イオン交換樹脂 Amberlite IR-120 B を用いてカラム法によって測定した流出曲線を併せて示す。 Ca 型に調整した樹脂 Amberlite IR-120B の使用量は 10.0g、樹脂床の高さは 4.4 cm、空隙率は 45.5%、通水速度は $3.55\text{ml}/\text{cm}^2\cdot\text{min}$ 、水温は 10.5°C であった。

図-3.25 より明らかなように、土壌カラムからの ^{110m}Ag の流出曲線は流出初期には地下水の流出曲線（つまり、塩素イオンの流出曲線）とほぼ同じような濃度増加を示すが、流出濃度 C/C_0 が 50% に達するとそれ以上は流出濃度は増加しない。全く同じ現象が樹脂カラムについても認められる。用いた樹脂 Amberlite IR-120 B の交換容量は公称 $4.3\text{meq}/\text{g-resin}$ であり（表-3.12 参照）、用いた土壌 M の交換容量 $24.3\mu\text{eq}/\text{g-soil}$ と比べるとその交換量は約 180 倍も大きい。文献によると、

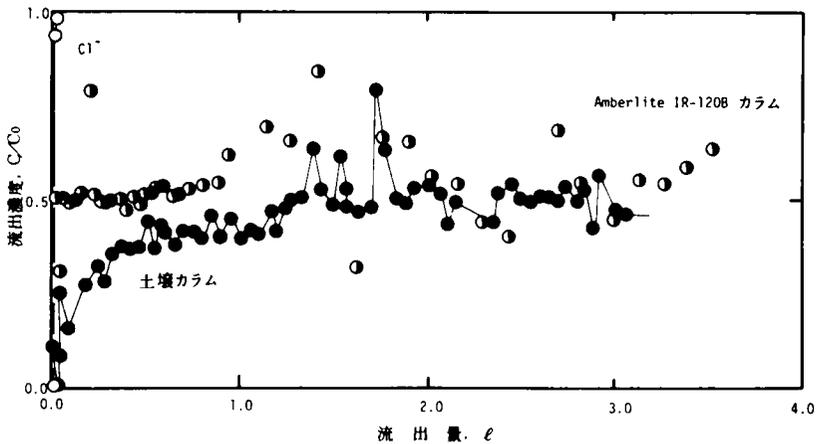


図-3.25 ^{110m}Ag の流出曲線

^{110m}Ag は中性～アルカリ領域でコロイドを形成しうること、⁽¹⁹⁾純水中では広い pH 域で Ag 金属が熱力学的に安定な化学種となること⁽¹⁶⁾等が明らかである。また図-3.25 にみられる流出曲線の特性は、非イオン状で存在することが確かめられた ^{90}Y の流出曲線(図-3.14 参照)の性質と極めてよく一致している。これらの事項から、実験条件下で ^{110m}Ag は非イオン状態で存在すると推定するのが妥当である。

⑧ ^{59}Fe の流出曲線

^{59}Fe の流出曲線を塩素イオンの流出曲線と共に図-3.26 に示す。同図に陽イオン交換樹脂 Amberlite IR-120 B を用いて、カラム法によって測定した流出曲線を併せて示す。 C_a 型に調整した樹脂 Amberlite IR-120 B の使用量は 10.0 g、樹脂床の高さは 4.5 cm、空隙率は 46.7%、通水速度は $2.11\text{ml}/\text{cm}^2\cdot\text{min}$ 、水温は 10.5°C であった。

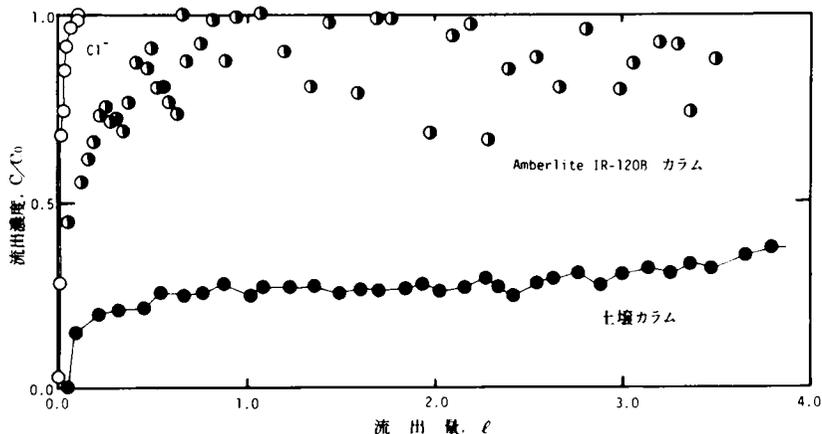


図-3.26 ^{59}Fe の流出曲線

図-3.26 より明らかなように、 ^{59}Fe の土壌カラム流出曲線は ^{110m}Ag の流出曲線と同じような性質を有している。すなわち、流出の初期においては地下水とほぼ同じ濃度増加を示すが、流出濃度 C/C_0 がほぼ30%に達した後はほとんど濃度が増加しない。この平衡流出濃度は、充填材が Amberlite IR-120 B に代ると、ほぼ90%になる。 ^{110m}Ag の場合には平衡流出率は充填材によらずほぼ50%であった。非イオン状で存在すると思われる放射性核種であっても、その移動特性の細部は核種によって異なるものと思われる。イオン交換樹脂カラムからの ^{59}Fe が実験条件下の地下水で主として陰イオンあるいは中性の化合物として存在することが推定される。 Fe は純水中では pH 5付近から $\text{Fe}(\text{OH})_2$ あるいは $\text{Fe}(\text{OH})_3$ の化学種として存在するのが熱力学的に安定であると推定されている。⁽¹⁶⁾

(3) ま と め

本節の実験によって明らかになった事項を整理するとつぎのようになる。

- (1) 土壌中の C_a 分が液相中へ移行する傾向にあるか否かは、炭酸カルシウムに関する飽和指数の符号を用いて定性的に判断することができる。ただし、本章第2節で述べたように、液相中の C_a 濃度の増加分を定量的に把握する場合には、飽和指数の増加分 ΔI_i に注目しなければならない。
- (2) その機構は明らかではないが、土壌中の C_a 分が溶解する傾向にあるか否かによって、放射性核

種の地中移動特性は大きく変化する。例えば ^{65}Zn の土壤カラム内での移動速度は、土壤中の Ca が溶解傾向にある場合($I_t < 0$)程速い。

(3) 試料土壌Mについてのカラム実験の結果(表-3.14参照)によると、土壤カラム内での放射性核種の移動速度は ^{110m}Ag , $^{59}\text{Fe} > ^{89}\text{Sr} > ^{60}\text{Co}$, $^{56}\text{Mn} > ^{65}\text{Zn} > ^{137}\text{Cs}$ の順に小さくなる。

(4) 本項で実験に用いた7核種の内、 ^{110m}Ag と ^{59}Fe とは実験条件下の地下水中で非イオン状態で存在すると考えられる。 ^{110m}Ag , ^{59}Fe の土壤カラムからの平衡流出濃度 C/C_0 は各々50%, 30%である。他の5核種すなわち ^{89}Sr , ^{60}Co , ^{56}Mn , ^{65}Zn および ^{137}Cs はイオン状態で存在すると思われる。

(5) 非イオン状態で存在する放射性核種の平衡流出濃度 C/C_0 は1.0にならず、流出初期の濃度増加のパターンは地下水そのものの移動のパターンとはほぼ同じである。

3.4.2 多核種が共存する場合の移動

第2章で述べたように、Sillenの凶解法(Frontal analysis)を除けば、放射性核種の地中移動を論ずる理論は、いづれも、理論的には、単一核種が地中に漏出した場合の移動を考えている。ところが、放射性廃棄物を処分することによって地中に漏出する放射性核種は決して一種類ではなく、廃棄物中に含まれる全ての核種が漏出する。勿論、クロマトグラフの理論等から、多核種が共存しているても、各核種の濃度が互いに影響を及ぼし合わない程低ければ、単一核種の移動を記述する理論を各々独立に適用して多核種の地中移動を予測できることは明らかである。ここでは、保健物理学上重要であるとされる ^{90}Sr (同位元素 ^{89}Sr を使用)、 ^{60}Co および ^{137}Cs が同時に地中に漏出した場合を想定し、これらの核種の土壤カラム内での移動特性を実験的に検討する。さらに、得られた実験結果をSillenの凶解法と井上の理論とで解釈し、核種の地中移動を論ずる場合の両理論の特色を具体的に明らかにする。

(1) 実験方法

内径25mmの硬質ガラス製カラムに試料土壌Mを充填し、 Sr , Co , Cs を同時に混合した水道水を通水して、各核種の土壤カラムからの流出曲線を測定した。調整した土壤カラムは土壤床の高さ19mm空隙率48.4%、用いた土壌の量は10.0gである。この土壌の陽イオン交換容量は、 ^{45}Ca および標準酢酸アンモニウム法により各々24.3、18.3 $\mu\text{eq/g}$ と測定されている。上記3核種を含む地下水の通水速度は1.70 ml/cm²・minであった。用いた水道水の水質を表-3.15に示す。この水道水の炭酸カルシウムに関する飽和指数は-0.63(10.0℃)である。この水道水に混入した各核種の濃度を整理して表-3.16に示す。

表-3.15 実験に用いた水道水の水質

次章で示すように、放射性廃棄物を地中に処分した場合、例えば地中処分場から地下水の流れの主方向下流側500mでの放射性核種の地下水中濃度は ^{90}Sr が $4.2 \times 10^{-12} \mu\text{Ci/ml}$

| 水質項目 | 濃度 meq/l | 水質項目 | 濃度 meq/l | 水質項目 | 濃度 ppm |
|------------------|-------------|--------------------|-------------|----------------|-----------|
| Ca^{++} | 1.08 | F | 0.01 | 酸消費量(pH9) | 0 |
| Mg^{++} | 0.58 | NO_3^- | 0.03 | SiO_2 | 6.50 |
| Na^+ | 0.60 | CO_3^{--} | 0 | Fe | 0.1 |
| K^+ | 0.03 | SO_4^{--} | 0.61 | Zn | 0.9 |
| 全陽イオン | (2.29) | 全陰イオン | (2.27) | Mn | 0 |
| HCO_3^- | 0.80 | 総硬度 | 1.66 | pH(10℃) | 7.8 |
| Cl^- | 0.82 | 酸消費量(pH5) | 0.80 | | |

^{60}Co が $1.1 \times 10^{-235} \mu\text{Ci}/\text{ml}$,
 ^{137}Cs が $1.9 \times 10^{-56} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ と推定されている (表-4.6 参照)。この濃度は地中処分場に近づく程大きくなるが、ここで採用した放射性核種の濃度 (表-3.16) はこれらの推定濃度よりも充分に大きい。それ

表 - 3.16 放射性核種の化学形態および濃度

| 核種 | 化学形 | 濃度 | |
|-------------------|-----------------|----------------------------------|-------------------------------|
| | | 放射能 ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$) | 化学的 (Mol/l) |
| ^{60}Co | CoCl_2 | 7.66×10^{-3} | 1.0×10^{-9} |
| ^{89}Sr | SrCl_2 | 3.66×10^{-3} | 2.7×10^{-10} |
| ^{137}Cs | CsCl | 1.21×10^{-2} | 6.1×10^{-9} |

故、地中処分場のごく近くを除けば、放射性核種の地下水中濃度が、ここで採用した濃度よりも大きくなることはないと考えられる。

ガラス・カラム流出液を一定時間毎に採取し、400 チャネル波高分析器で γ 線放射能を、 2π ガスフロー・カウンターで β 線放射能を各々計測し、 γ 線エネルギーの分布から ^{60}Co および ^{137}Cs の濃度を決定し、全 β 線放射能計数率からこれらの核種の寄与分を除いて ^{89}Sr の濃度とした。

第2章で述べた理論に基づいて、放射性核種の土壌カラム内での移動を予測するために、必要な基礎データを得ることを目的として以下の2組の予備実験を行なった。

① 分配係数値の測定

カラム法によって測定した Sr , Co , Cs の分配係数値を、実験条件と共に整理して表-3.14 に示す。

② 交換平衡曲線の測定

Sillen の図解法によって核種の移動を予測するには、当該核種の土壌と地下水との間の交換平衡曲線を得る必要がある。ここでは、第2節で行なった検討の結果、核種の土壌との相互作用を論ずる場合の重要な安定元素であることが判明した Ca を参照イオンとして、各核種の交換平衡曲線を測定する。 $1\text{N}-\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ を用いて Ca 型に調整した土壌の一定量をビーカーにとり、単一核種を含む模擬地下水 (水道水、核種濃度等の実験条件は表-3.15、表-3.16 参照) を加えてよく攪拌した後、約24時間放置し上澄液中の核種濃度を測定して、各核種の質量作用の法則による平衡定数 (式2-2 参照) を算定した。

(2) 実験結果と考察

^{89}Sr , ^{60}Co , ^{137}Cs の土壌カラムからの流出曲線を塩素イオンの流出曲線と共に図-3.27 に示す。単一核種を含む地下水を土壌カラムに通水して得た各核種の流出曲線から算定した分配係数値は、表-3.14 より、 $kd_{\text{Sr}} = 6.7 \text{ ml/g}$, $kd_{\text{Co}} = 18.8 \text{ ml/g}$, $kd_{\text{Cs}} = 409.4 \text{ ml/g}$ であった。分配係数値の小さな核種程地中を速く移動するから、土壌カラム流出液中に最初に検出される核種は ^{89}Sr , 次いで ^{60}Co , ^{137}Cs の順ということになる。この順序は、現実に図-3.27 の各核種の出現順序と一致している。

バッチ実験によって求めた質量作用の法則による各核種の Ca に関する交換平衡定数は各々、 $K_{\text{Ca}}^{\text{Sr}} = 2.72$, $K_{\text{Ca}}^{\text{Co}} = 30.1$, $K_{\text{Ca}}^{\text{Cs}} = 1.5 \times 10^5 \text{ ml/g}$ であった。これらの値を用いて計算した各核種の平衡曲線を図-3.28 に示す。Frontal analysis によれば、平衡曲線の原点における勾配が小さい核種ほど早く地中を移動するから、核種の土壌カラム中での移動速度の大ききの順序は $^{39}\text{Sr} > ^{60}\text{Co} > ^{137}\text{Cs}$ になることがわかる。図-3.28 の交換平衡曲線を用いて、Frontal analysis を適用して得

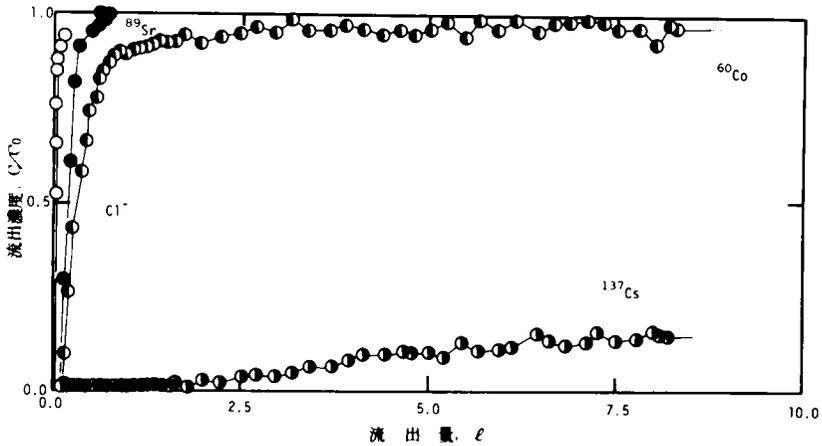


図-3.27 ^{89}Sr , ^{60}Co , ^{137}Cs の土壌カラム流出曲線

た各核種の理論流出曲線を実測値と共に図-3.29 (A) に示す。ただし、同図には縮尺の関係から ^{137}Cs の理論流出曲線は描かれていない。Frontal analysisによれば、例えば ^{60}Co の理論流出曲線は不連続になる。これは、すでに前章で述べたように、 ^{60}Co の土壌による交換吸着能が ^{89}Sr の交換吸着能に優ることから得られる同理論の一般結論の1つである。しかしながら、 ^{60}Co の理論流出曲線は、実測値の平均的な流出位置を比較的良好に説明している。Frontal analysisによる核種の理論流出曲線は、バッチ実験によって求められた交換平衡定数から平衡曲線を得、さらに簡単な作図を行なうことにより図解的に得られた。すなわち、本理論による理論

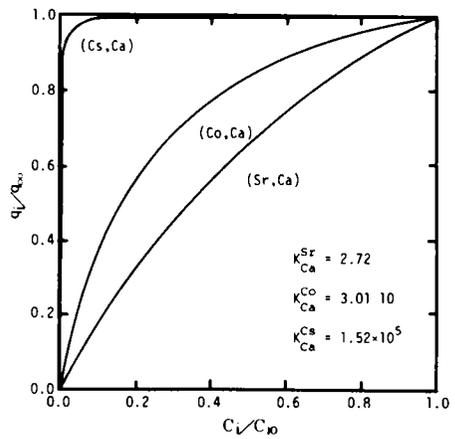


図-3.28 ^{89}Sr , ^{60}Co , ^{137}Cs の交換平衡曲線

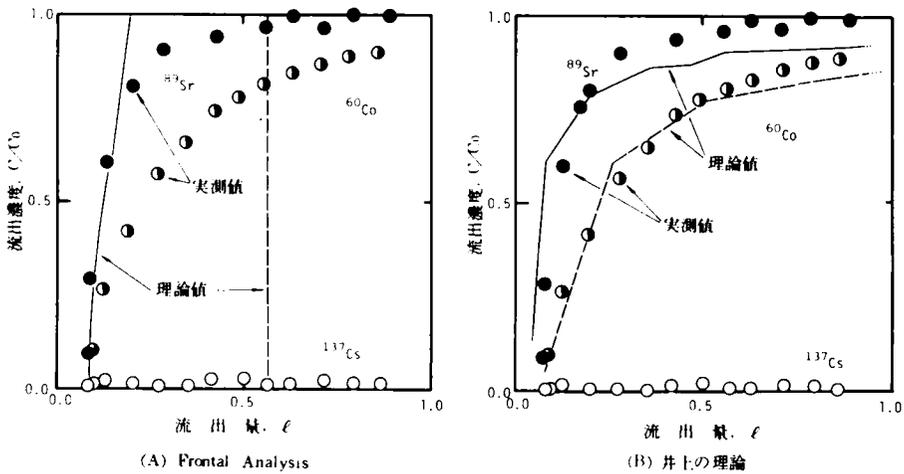


図-3.29 理論流出曲線と実測流出曲線との比較

流出曲線は、地下水と土壌とによって定まる物理化学量のみから定まり、井上の理論を適用する場合に必要な地下水そのものの流出曲線を得る必要はない。それ故、Frontal analysis によって実地層での核種の移動を予測するには、現地での野外調査によって地下水の移動状況を把握する必要はない。ただし、核種を含む地下水が人間の生活環境に流出するまでに接触する土壌の量を算定する必要はある。

^{89}Sr のみを含む水道水を用いてカラム法で測定した ^{89}Sr の分配係数値は 6.7 ml/g であり(表-3.14 参照)、図-3.27 の流出曲線を得た土壌カラムの空隙率は 0.484 、土壌の密度は 2.49 g/cm^3 である。従って、式(2-45)で定まる時間変換係数 $K_{f,Sr}$ は、 ^{89}Sr について

$$K_{f,Sr} = 1 + \frac{1-0.484}{0.484}(2.49)(6.7) = 18.8$$

となる。同様に ^{60}Co については $K_{f,Co} = 50.9$ 、 ^{137}Cs については $K_{f,Cs} = 1.086$ である。故に、井上の理論によれば、これらの核種の理論流出曲線は、個々の核種の土壌との交換吸着反応が他の核種と全く独立に起こると仮定すれば、水のトレーサーとして用いた塩素イオンの流出曲線(図-3.27 参照)を各々、通水量(時間)軸方向に、 18.8 倍、 50.9 倍、 1.086 倍することによって得ることができる。得られた理論流出曲線を実測値と共に図-3.29(B)に示す。理論流出曲線は実測値とよく一致している。このことは、放射性廃棄物の地中処分に關して多核種の地中移動を論ずる場合には、核種の地下水中での濃度は、各々の核種が独立に土壌と交換吸着するとみなせるほど低く、それ故、井上の理論を適用して多核種が共存する場合の地中移動を論ずることができることになる。井上の理論による核種の理論流出曲線は同じカラムを用いて測定した地下水の流出曲線を通水量(時間)軸方向に K_f 倍することによって得られる。故に、井上の理論を適用して実地層(帯水層)での放射性核種の移動を予測するには、現地での地下水流動調査、ボーリング調査または数値計算などにより、地下水の移動状況を予め把握する必要がある。同理論は、実験室で得た成果を実地層にスケール・アップして適用する場合に理論的な問題がなく、この点でも Frontal analysis に優る。

(3) ま と め

本節で得られた結論を整理して示すと次のようになる。

(1) 実験条件下の核種濃度では、放射性核種は各々独立に土壌と交換吸着反応を起こすとみなせる。従って、2成分間のイオン交換現象を前提にして展開された井上の理論を個々の核種に独立に適用して、多核種が共存する場合の各核種の地中移動を予測することができる。

(2) Frontal analysis、井上の理論とも各核種の地中移動の速度の順位を正しく予測することができる。ただし、流出曲線の予測精度は井上の理論の方がよい(図-3.29(B)参照)。

(3) Frontal analysis を実地層に適用する場合には、核種を含む地下水が人間の生活環境に出現するまでに接触する土壌の量を推定する必要がある。この推定を精度よく、少なくとも交換平衡曲線の測定精度と同程度に実施するには多くの困難が伴う。むしろ、Frontal analysis は土壌カラムのような人工環境中での核種の移動を論ずる場合に威力を発揮する方法である。

(4) 井上の理論を実地層に適用する場合には、廃棄物処分場の地下水が評価の対象になる当該位置に至る移動状況を何らかの方法で予測・把握する必要がある。この手続きは、技術的には容易で、しかも、この手続きを採ることによって土壌カラム実験から実地層へのスケール・アップに伴う諸問題

を回避することができる。井上の理論は工学的実用度の大きい理論であるといえる。

3.4.3 核種の地中移動に影響を及ぼす要因

次節以降では、地層模型を用いて地層中に処分された廃棄物から、放射性核種が漏出し、地層中を移動する現象について実験的・理論的に検討する。ここでは、前節までの実験によって、放射性核種の地中移動に影響を及ぼすことが明らかになった諸要因を整理し、併せて当該要因の変化によって核種の地中移動特性がどのように変化するかを整理することにする。

(1) 核種の存在状態

放射性核種が地圏環境中でどのような存在状態をとるのが安定か、大まかに、イオン状で存在するか非イオン状で存在するかによって、その移動特性は大きく変化する。放射性核種が非イオン状で存在する場合には、非イオン状核種のある分率は土壌によって収着されず、ほぼ地下水と同速度で地層中を移動することになる。通常の地下水の pH 範囲で非イオン状で存在すると考えられる放射性核種には ^{90}Y 、 ^{59}Fe 、 ^{110m}Ag がある（但し、本論文で検討の対象とする原子力発電所から排出される廃棄物中に含まれる核種の内では）。核種の種類、土壌の種類、地下水の種類等による核種の地中移動パターンの変動には、核種の存在状態の変動を媒介とするものが含まれる。

(2) 地下水系の化学的性質

地下水中の無機塩が沈澱する傾向にあるか、溶解する傾向にあるかによって、放射性核種の地中移動特性が変る。特に地下水中の Ca が沈澱する傾向にある場合には核種の地中移動速度は遅くなり、逆の場合には速くなる可能性が強い。この現象は ^{65}Zn については実験的に確認された（図-2.2 参照）。当該地下水が Ca 不足であるか否かは炭酸カルシウムに関する飽和指数 I_t の符号によって推定することができる。

(3) 地下水中の共存無機塩濃度

放射性核種が土壌に保持される度合を分配係数値を指標に用いて評価すると、バッチ法による実験結果では地下水の pH が低い程また地下水中の $Ca + Mg$ 濃度が大きい程分配係数値が小さくなる傾向がある。それ故地層中の放射性核種の移動速度は大きくなる。分配係数値の変化は Ca 過剰土壌では地下水中の $Ca + Mg$ 濃度と、また Ca 不足土壌では地下水の pH 値との相関が強い。

(4) 地層の種類

放射性廃棄物の処分あるいは工学的貯蔵の為に用いる地層、即ち、廃棄物から漏出した放射性核種が移動する地層が帯水層（飽和層、地下水層）であるか通気層（不飽和層）であるかによって、核種の挙動に差異が認められる。両地層は、第一義的には、地層を構成する土壌の間隙が水で飽和されているか否かによって区別されるが、付随的には植生の影響をうけているか否か等生物学的・物理学的・化学的性質にも差異が認められる。式（3-5）からも伺うことができるように、一般に、通気層における核種の移動速度の浸透速度に対する比の値は帯水層における値より小さい。地層内での核種の移動速度は土壌水分の移動速度と密接な関係にあるが、Marter⁽²⁵⁾ は現地実測によって通気層における土壌水分の移動速度が帯水層における地下水の移動速度のほぼ $1/10$ であると報告している。こ

の実測結果は通気層における核種の移動速度が帯水層よりも遅くなることを意味している。

廃棄物の処分に用いられる地層が溶解性有機物を多量に含む場合には、そうでない場合に比べて、核種の移動速度は速くなる⁽¹⁾

(5) 廃棄物の形態（種類）

処分される廃棄物の形態（種類）つまり、固体廃棄物か液体廃棄物か、セメント固化体か、アスファルト固化体か、ガラス固化体か、再処理廃棄物か否か等々によっても核種の地中での移動速度は変化する。特に再処理廃液のように放射性核種の安定同位体が多量に共存する場合には、当該核種の地中移動速度は早くなる。酸性度の強い再処理廃液が直接に地中に漏出するような場合には、酸と土壌とが反応することによって核種の移動速度が速くなることが考えられる。⁽²⁶⁾ただし、フッ酸を砂層に注入して放射性核種の保持容量を増大させる試みが報告されている⁽²⁷⁾例もあり、酸の存在が必ずしも移動速度を速くすることを意味するとは限らない。

廃棄物をセメント固化して地中処分すると、廃棄物と接触する土壌水中のCa + Mg 濃度等の無機塩濃度が高くなるため、アスファルト固化あるいはガラス固化する場合に比べると、廃棄物固化体から浸出する核種の移動速度は速くなると考えられる。しかも、多くの場合核種の固化体からの浸出速度は固化剤がセメントである場合が大きく、アスファルト、ガラスの順に小さくなる。

廃液を処分する場合には、固体廃棄物を処分する場合に比べて、核種は固化体からの浸出に要する時間の分だけ早く地層に供給されるため、核種が当該地点に達するのに要する実質総時間は短くなり、それ故見掛け上核種の地中での移動速度が速くなるのと同じ効果を与える。

(6) 処分の工法

どのような処分方法を採用するかによって核種の見掛けの移動速度が変化する。一般には、厳格な処分方法を採用すれば、それだけ核種の地中での移動速度が小さくなるのと同じ効果を生むことができる。

3.5 帯水層模型における放射性核種の移動

帯水層における放射性核種の移動に関する研究は、従来から、通気層における研究に比較すると進んでいる。これらの研究は、大別して、実際の廃棄物地中処分場における放射性物質の分布の現状調査として実施されているもの^{(6),(28)~(41)}と放射性物質の移動を記述する理論を実験室規模の実験によって検討しようとするもの^{(18),(26),(42)~(50)}とに分類できる。前者の研究は、放射性物質の移動の将来予測が充分に行なっていない現状に、また、後者の研究は理論の適用性を検証する実験が主として土壌カラム等を用いた1次元通水実験であり、それ故実地層との対応に無理がある点に、それぞれ不十分な点があるといえる。

本節で行なう研究は、後者の研究に加えており、帯水層模型実験装置を用い、放射性核種の帯水層中での移動現象をより現実に近い状態で実験的に検討することを目的にしている。すなわち、帯水層模型中に放射性同位元素を含むセメント固化体を設置し、セメント固化体から浸出した放射性同位元素が地層中をどのように移動するかを主として、放射性廃棄物地中処分の安全性を考える場合に重要な^{90Sr}⁽²¹⁾に注目して、長期にわたって実験的に研究する。

3.5.1 実験方法

(1) 模型帯水層の概要

実験に用いた帯水層模型を図-3.30に示す。模型地層は2重の塩化ビニール製水槽からなり、土壌(砂)を充填して帯水層模型になる内側の水槽は深さ55 cm、長さ105 cm、幅40 cmである。内側の水槽と外側の水槽との間には水を満たし、クーリング・サーキュレータを用いて水温をコントロールすることによって、帯水層模型全体の温度をコントロールした。地層内の5ヶ所および室温を測温抵抗体および打点式記録計を用いて自動的に測定・記録した。

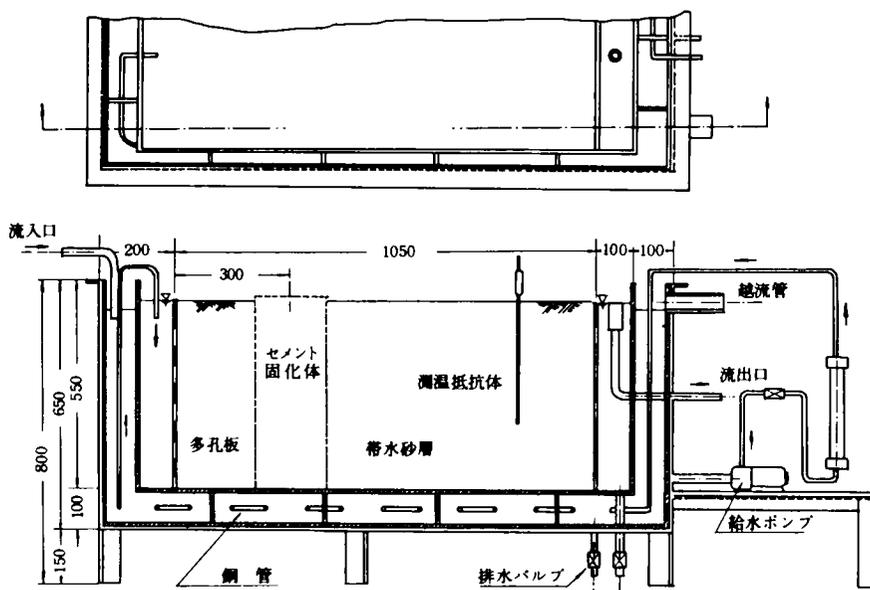


図-3.30 帯水層模型実験装置(数値の単位はmm)

内側の水槽に日本原子力研究所・東海研究所構内から採取した砂306 kgを深さ50 cm、空隙率が35.6%になるように充填した。砂は粘土分をほとんど含んでおらず、有効径 $255\ \mu$ 、均等係数2.0、密度 $2.64\ \text{g/cm}^3$ である。標準酢酸アンモニウム法で測定した砂の陽イオン交換容量は $9.7 \pm 0.6\ \mu\text{eq/g}$ であった。カラム法で測定した砂の分配係数値を核種毎に実験条件と共に整理して表-3.17に示す。

地層への水道水の供給速度は実験開始時は $250 \pm 20\ \text{ml/min}$ (間隙平均速度 $506 \pm 40\ \text{cm/day}$)であったが、その後地層間隙の目づまりを生じて急速に減少し、実験開始後1ヶ月~6ヶ月間は $55 \pm 5\ \text{ml/min}$ (間隙平均速度 $110 \pm 10\ \text{cm/day}$)、その後さらに漸減し、実験開始後1年より実験停止までの期間は $15 \pm 5\ \text{ml/min}$ (間隙平均速度 $30 \pm 10\ \text{cm/day}$)の範囲をほぼ1ヶ月周期で変動した。ただし、実験継続期間中の模型地層流入側・流出側間の水位差は4 cmで一定であった。また実験中の地層内温度は $20 \pm 2\ ^\circ\text{C}$ であり、地層内温度はほぼ均一に保たれていた。

表 - 3.17 原研砂の分配係数值と測定条件

| 核種 | 土 壌 カ ラ ム | | | 流 入 溶 液 | | | | 流 速 ml/cm ² .min | 分配係数 kd ml/g |
|--------------------|-----------|----------|------------|--------------|------|-------|----------------------|--------------------------------|--------------------|
| | 高 さ mm | 重 量 g | 空 隙 率 % | 総硬度 meq/l | pH | 飽和指数 | 放射能濃度 μCi/ml | | |
| ⁹⁰ Sr | 59.0 | 50.0 | 33.1 | 1.58 | 7.18 | -0.72 | 3 × 10 ⁻³ | 1.97 | 4.9 |
| ⁶⁰ Co | 70.0 | 50.0 | 44.9 | 1.63 | 7.06 | -0.71 | 3 × 10 ⁻³ | 2.20 | 25.4 |
| ¹³⁷ Cs | 20.0 | 20.0 | 32.8 | 1.61 | 7.20 | -0.67 | 3 × 10 ⁻³ | 1.48 | 694.6 |
| ⁵⁴ Mn | * | 10.0 | * | 0.92 | 7.51 | -1.24 | 4 × 10 ⁻⁴ | * | 35.2 |
| ⁶⁵ Zn | * | 10.0 | * | 2.01 | 7.32 | -0.70 | 7 × 10 ⁻⁴ | * | 30.0 |
| ⁵⁹ Fe | * | 10.0 | * | 1.38 | 7.76 | -0.69 | 1 × 10 ⁻³ | * | 1.4 |
| ^{110m} Ag | * | 10.0 | * | 1.36 | 7.72 | -0.56 | 4 × 10 ⁻⁴ | * | 15.7 |

* ⁹⁰Sr, ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs 以外の核種はバッチ法による測定結果を示す。

(2) 模擬固化体の作製

地層内には流入端から 30 cm 流下側に放射性核種を封入固化したセメント固化体を設置した。固化体は、普通ポルトランドセメント 22.61 kg を、放射性核種を含む水道水 9.05 kg で粘りませて（水セメント比 40 %）、塩化ビニルパイプを型枠にして打設した。セメント固化体は直径 19.6 cm、高さ 51 cm、湿潤状態で 7 日間養生した後、型枠からはずして実験に使用した。

セメント固化体中に封入固化した放射性核種は、原子力発電所から排出される放射性核種の内から選び ⁹⁰Sr 5 mCi、⁶⁰Co 100 μCi、¹³⁷Cs 6 μCi、⁵⁴Mn 2.5 μCi、⁶⁵Zn 5 μCi、⁵⁹Fe 0.01 μCi、^{110m}Ag 4 μCi とした。これら各放射性核種の封入量は、原子力発電所から発生する放射性核種の発生比率を参考にし、かつ安全で意味のある実験を行なうことを目的にして決定した。例えば ⁶⁰Co のセメント固化体からの浸出速度が小さい（表 - 3.5 参照）ため、意味のある実験を行なうため（つまり、地層間隙水中に ⁶⁰Co を検出できるようにするため）には数 10 Ci の ⁶⁰Co を封入する必要があると推定された。実験では担当者の安全を確保するために ⁶⁰Co の封入比を小さくし、逆に放射性廃棄物地中処分の安全性を評価する上で重要な核種である ⁹⁰Sr の封入比率は大きくした。

(3) 地層内の水流流況

長さ 55 cm、直径 5 mm（検出部は直径 0.5 mm、長さ 10 mm の白金）の電極を用いて、トレーサー法によって地層間隙水の流速を測定した。すなわち地層内に設置した（図 - 3.31 参照）電極の

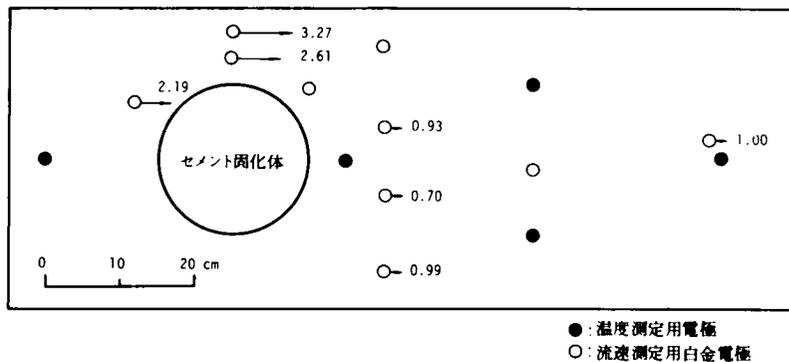


図 - 3.31 流速測定用電極および温度測定用電極の配置

上流側に注射器で NaCl 溶液を注入し、電極間の電気伝導度に変化するまでの時間を読みとって所定

の位置の流速を算出した。本測定法で間隙水の流速を測定する場合の測定誤差は±25%程度であると思われる。

(4) 地層内での核種の移動

実験開始後、模型地層内の所定の位置（間隙水の流下方向に10 cm間隔、流下方向と直交する方向に5 cm間隔、深さ方向には地層表面から10 cm、30 cm、48 cmの位置に合計約110の間隙水サンプリング位置を設定した）から注射器を用いて、間隙水0.5mlを採取した。採取した間隙水を試料皿中で蒸発乾固した後、各々β線を2πガスフロー・カウンターで、γ線を400チャンネル波高分析器（*NaI-Tl*）で計測した。また、地層への流入水および地層からの流出水については水中のカルシウム・マグネシウム濃度、酸消費量（*pH5*）、水素イオン濃度（*pH*）を測定した。

模型地層への通水を停止し（通水継続期間1,280日）、地層の間隙水を排除して、地層を解体した。地層内の所定の位置（間隙水の流下方向に10 cm間隔、流下方向と直交する方向に5 cm間隔、深さ方向に10 cm間隔の位置にサンプリング位置を設置した。ただし、底面のみ深さ地層表面から48 cmの位置を採用した。）から土砂約10 gを採取した。採取した土砂に1*N-HCl*溶液50 mlを加えてよく振とうした後48時間放置し、液相へ移行した放射性物質を各々β線について2πガスフロー・カウンターで、γ線について400チャンネル波高分析器で計測した。1*N-HCl*溶液による放射性核種の溶離率は⁹⁰Srが94.7%、⁶⁰Coが96.2%であった。

3.5.2 地層の特性

(1) 地層流入・流出水の水質変化

地層流入水が、地層中を通過することによって増加する *Ca + Mg* 濃度、酸消費量（*pH5*）、*pH* 値の増加分を図-3.32に示す。地層流入水中のこれら水質因子は時間とともに変動しており、その変動域は *Ca + Mg* 濃度が 1.08 ± 0.02 meq/l、酸消費量（*pH5*）が 0.82 ± 0.18 meq/l、*pH* 値が 7.01 ± 0.27 である。

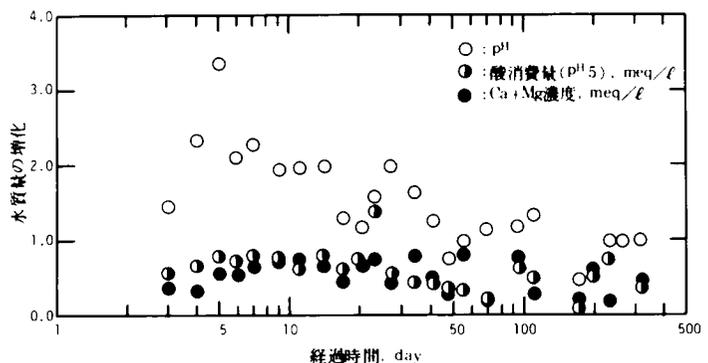


図-3.32 地層通過水の水質変化

水中のこれら水質因子はいずれも地層中を通過する間に増加している。水質因子の濃度増加は（流出水中濃度から流入水中濃度を引いたもの）実験開始直後に著しく、時間の経過と共に比較的早く低減するものの、濃度増加の状態は長期間継続する。地層への流入水中の *Ca* 濃度は炭酸カルシウムの溶解度から定まる飽和度より小さいため、*Ca + Mg* 濃度の上昇は地層内の溶解性炭酸カルシウムがなくなるまで続くものと思われる。

(2) 地層内の水流流況

放射性核種の地中移動に影響を及ぼす諸因子のうち、特に重要なものの1つに地下水の流向流速を

挙げることができる。トレーサーを用いて地下水の移動を把握する場合には、拡散・輸送等の諸効果を包括した全体としての移動現象を実測するため、地下水の流速分布を拡散効果等を分離して把握する必要はない。ただし、基礎式を数値的にせよ直接解く場合には、地下水流速の分布と拡散効果を区別して把握しなければならない。ところが、通常は地下水の移動速度が極めて遅いため、迅速に地下水の流速分布を実測することは難しく、そのため、地下水の流速分布については地下水位等の実測値から計算によって推定する例が多い。⁽⁶⁾ここでは、実験に用いた模型帯水層内の流速分布の推定方法について述べる。

帯水層内の水の流れは渦の発生しない定常流であるとみなせるから、流れを記述する基礎方程式として次のラプラスの式を用いることができる。

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} = 0 \quad \dots\dots\dots (3-6)$$

ここに、 ψ は速度ポテンシャルであり、流速 v_x 、 v_y は各々速度ポテンシャルを用いて次式によって定めることができる。

$$v_x = -\frac{\partial \psi}{\partial x}, \quad v_y = -\frac{\partial \psi}{\partial y} \quad \dots\dots\dots (3-7)$$

模型帯水層を格子間隔が a ($=\Delta x = \Delta y$)の正方形格子網で覆い、位置 $(x, y) = (i \Delta x, j \Delta y)$ を格子点 (i, j) で代表させる。式(3-6)を差分近似して、電子計算機を用いて数値的に関数 ψ の分布を決定する。ついで式(3-7)を用いて流速分布を決定することができる。計算に際して採用した境界条件はつぎのとおりである。

- 1) 固化体表面および地層の対称軸： $\psi = 0$
- 2) 地層の側壁： $\psi = \text{Const}$
- 3) 流入端および流出端： $\frac{\partial \psi}{\partial y} (= -v_y) = 0$

本方法によって計算した模型帯水層内の流速分布を図-3.33に示す。一方、トレーサー法によって測定した地層間隙水の流速を、地層流出端付近の流速で無次元化して図-3.31に示す。実測値(図-3.31)は、トレーサー法の測定精度の範囲内で、模型地層が均質・等方性であるとの仮定の

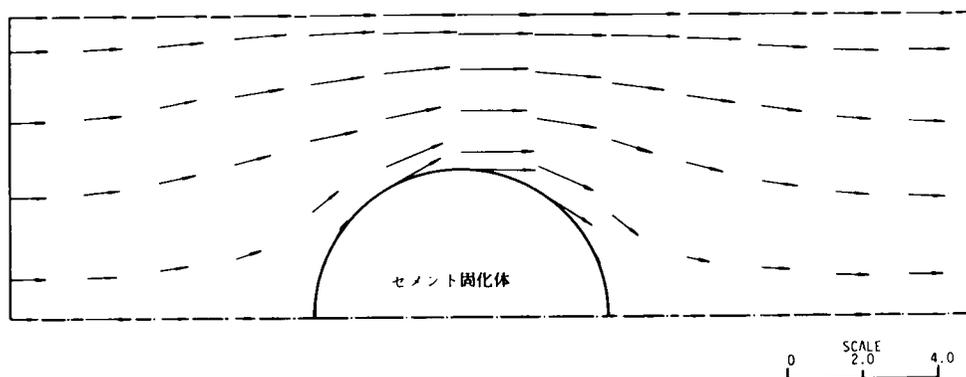


図-3.33 数値的に予測した地層間隙水の流速分布

下に理論的に推定した流速分布（図-3.33）とよく一致している。このことは、作製した模型地層が水理学的にはほぼ一様な地層であることを示している。

(3) 地層間隙水の拡散特性

模型地層内での地下水の移動・拡散状況を実験的に把握するために、三重水素水(HTO)をトレーサーとして、地層内に注入して、一定時間毎に地層間隙水中の HTO 濃度を測定した。 HTO $3.5 \times 10^{-3} \mu Ci/ml$ を含む水道水を微量定流量ポンプを用いて $36.5 ml/hr$ ($0.13 \mu Ci/hr$)の割合で固化体の表面、地層表面から深さ $30 cm$ の位置に定常注入した。注入位置を図-3.34に示す。地層間

隙水の流下方向に $10 cm$ 間隔、流下方向に直交水平方向に $5 cm$ 間隔に設定した各サンプリング位置で、一定時間毎に深さ $30 cm$ の位置から約 $0.5 ml$ の間隙水を

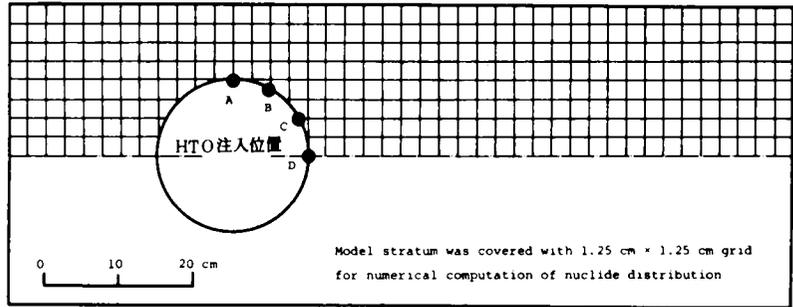
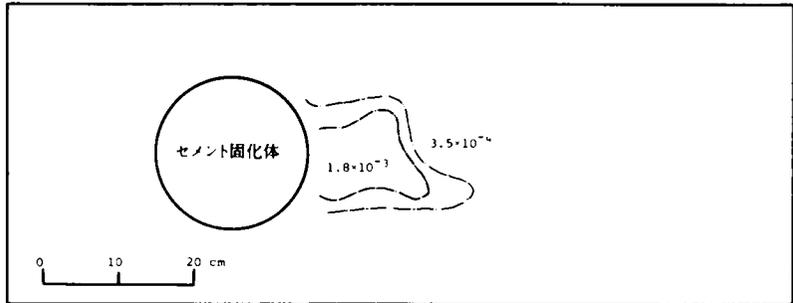


図-3.34 三重水素水(HTO)の注入位置

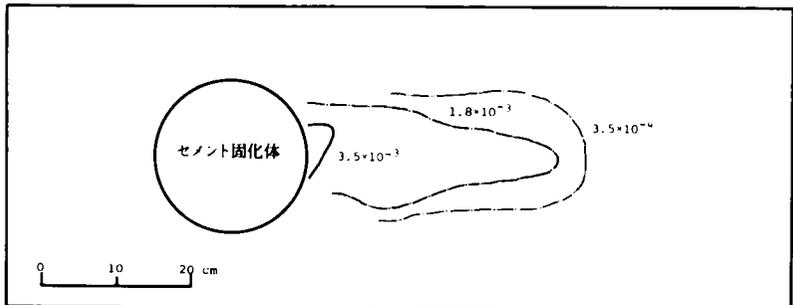
注射器を用いて採取し、間隙水中の HTO 濃度を流体シンチレーションカウンターで計測した。各サンプリング位置における間隙水中 HTO 濃度から、模型地層の表面から深さ $30 cm$ の位置の HTO 濃度分布を推定した。

HTO をD注入点（図-3.34参照）から注入した後 1.5 日、 3.5 日、 5.5 日および平衡状態での地層間隙水中濃度分布を図-3.35(A)~(D)に示す。



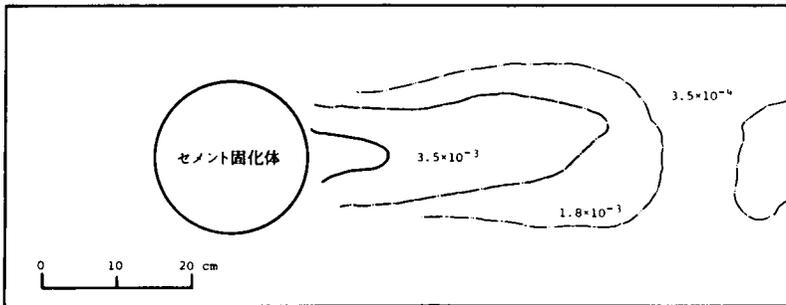
(A) 1.5日後

また、 HTO をA注入点から注入した場合の注入開始後 1.9 日、 4.5 日、 8.5 日および平衡状態での地層間隙水中濃度分布を図-3.36(A)~(D)に示す。

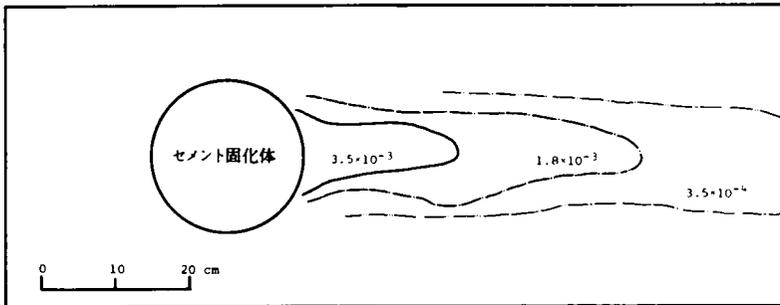


(B) 3.5日後

図-3.35 三重水素水の地層間隙水中濃度分布（注入点：D）
図中の数値は HTO 濃度、 $\mu Ci/ml$

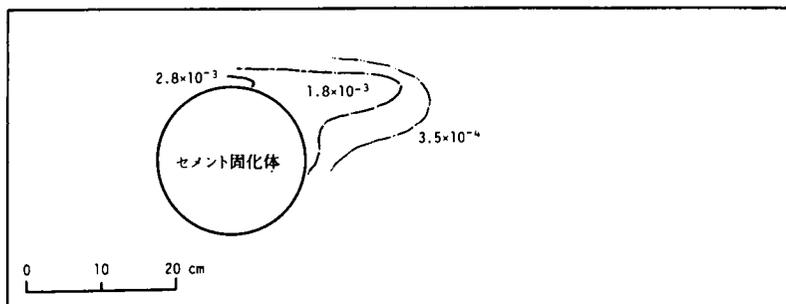


(C) 5.5 日後



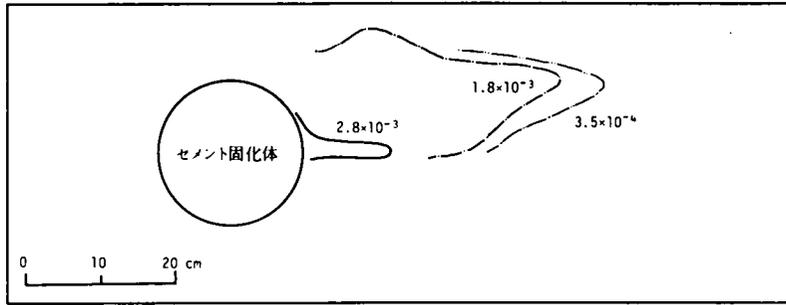
(D) 平衡濃度分布

図-3.35 三重水素水の地層間隙水中濃度分布（注入点：D）
図中の数値はHTO濃度、 $\mu\text{Ci}/\text{ml}$

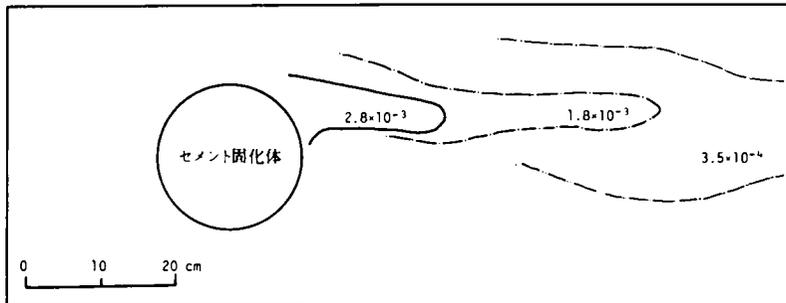


(A) 1.9 日後

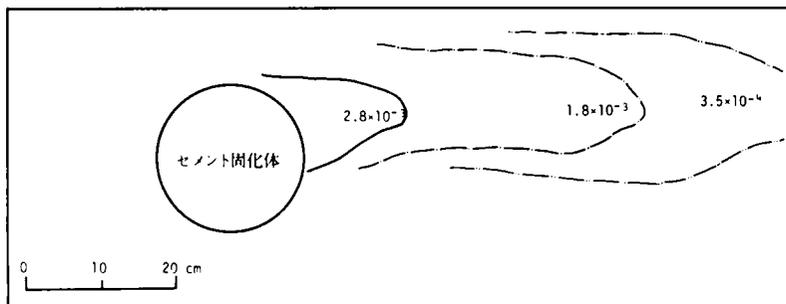
図-3.36 三重水素水 (HTO) の地層間隙水中濃度分布（注入点：A）
図中の数値はHTO濃度、 $\mu\text{Ci}/\text{ml}$



(B) 4.5 日後



(C) 8.5 日後



(D) 平衡濃度分布

図-3.36 三重水素水 (HTO) の地層間隙水中濃度分布 (注入点: A)
 図中の数値は HTO 濃度, $\mu\text{Ci}/\text{ml}$

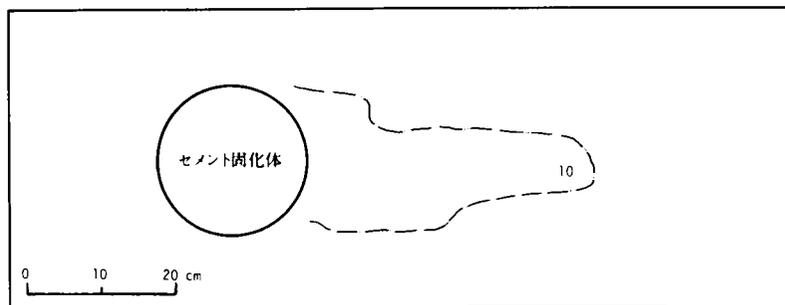
3.5.3 模型地層内での核種の移動

(1) 核種の水中濃度分布

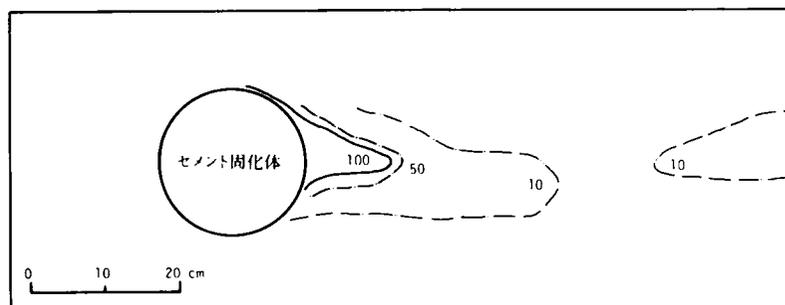
注射器で採取した地層間隙水中に γ 線放射能を検出することはできなかった。このことは、 γ 線を放出する核種がセメント固化体から浸出しなかったか、あるいは浸出したとしても極微量であったため、検出できなかったことを意味する。

地層間隙水中に β 線放射能が検出された。地層間隙水中の放射性核種の β 線エネルギー・スペクトルの測定結果、および間隙水サンプル中核種の放射能がほぼ 2 週間後に永続平衡に達することから、

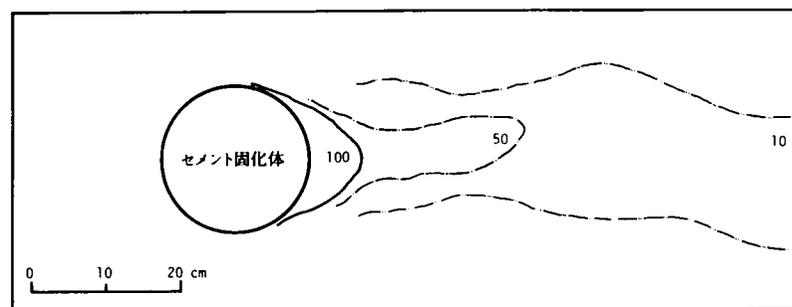
この放射性核種は ^{90}Sr であると考えられる。実験開始後55日、265日、859日および1269日後の、地層表面から深さ30 cmの水平断面における地層間隙水中の ^{90}Sr の濃度分布を各々図-3.37(A)～(D)に示す。地層間隙水の流下方向に沿った縦断面内における間隙水中の ^{90}Sr 濃度分布を図-3.38に、また間隙水の流下方向、セメント固化体の中心を通る縦断面内の深さ30 cm、セメント固化体中心より各々10 cm、40 cm、60 cmの位置における間隙水中 ^{90}Sr 濃度の経時変化を図-3.39に示す。セメント固化体から浸出した ^{90}Sr は、地層間隙水に運ばれて地層内を移動し、次第にその分布域を広くしていく(図-3.37参照)。 ^{90}Sr の分布域の先端付近で



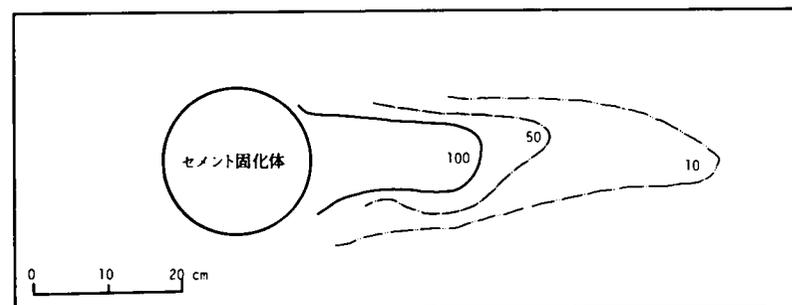
(A) 55日後



(B) 265日後



(C) 859日後



(D) 1269日後

図-3.37 地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度分布(濃度の単位は pCi/ml)

は、濃度域がはく離
 (図-3.37(B))し
 たり、流れと直角
 方向にゆらぐ(図
 -3.37(C))等の現
 象が認められる。
 ^{90}Sr の濃度分布は、
 模型地層の中心軸
 (中央面)に対し
 はほぼ左右対称であ
 るといえる。

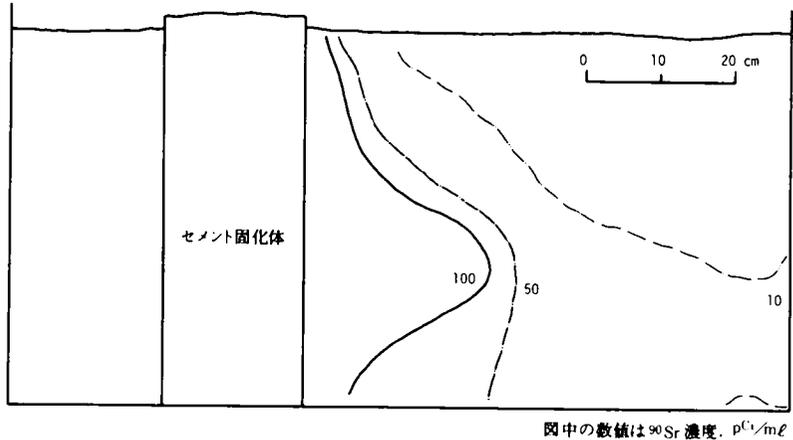


図-3.38 地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度の鉛直断面分布(1269日後)

図-3.39をみ
 ると、セメント固
 化体からの ^{90}Sr
 の初期浸出が著し
 いことが伺えるが、
 同時に ^{90}Sr の初
 期浸出による間隙
 水中の濃度増加は、
 地層中を流下する
 とともに急激に低
 減することが解る。
 また、セメント固
 化体(半径約9.8
 cm)の近くでは
 時間が経過しても
 間隙水中の ^{90}Sr

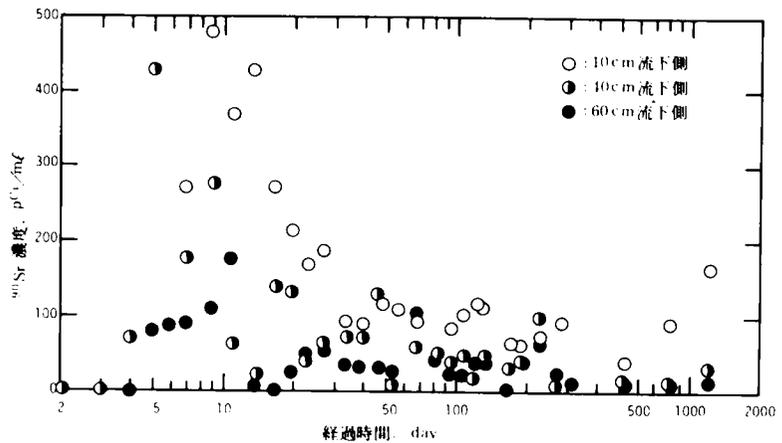


図-3.39 地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度の経時変化

濃度はある程度変動しているが、セメント固化体中心より40 cm, 60 cm流下した位置では、300~500日経過するとほとんど ^{90}Sr 濃度の変動が認められなくなる。

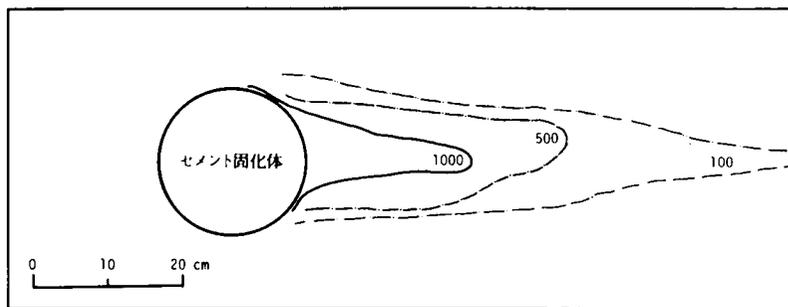
間隙水中の ^{90}Sr の縦断面内分布(図-3.38)をみると、 ^{90}Sr の移動速度が深さ方向に必ずしも一様でないこと、このことから逆に、 ^{90}Sr の輸送媒体である地層間隙水の移動速度が一様でなく、密度流が生じていることがわかる。地層底面付近に高く、地層表面付近に低い ^{90}Sr 濃度分布は、後で述べるように、間隙水中 ^{90}Sr 濃度の平均的変動を表すものと思われる土壌中の濃度分布(図-3.41参照)についても確認されている。密度流の原因は明らかではないが、地層内温度の不均一(温度差密度流)やCa+Mg濃度等の不均一(濃度差密度流)などが原因であると思われる。高濃度域(100 pCi/ml以上)の進行が底面付近ではなく、深さ30 cm付近にあることが特異的である。

(2) 核種の土壌中濃度分布

セメント固化体から数 cm 以上離れた位置の土砂からは γ 線放射能を検出することができなかった。

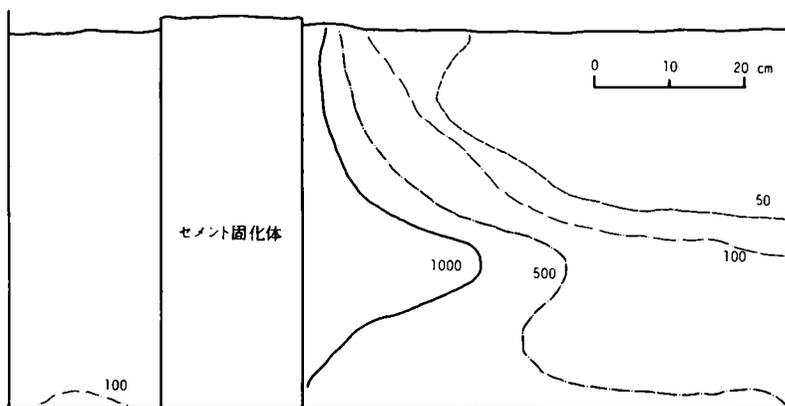
一方、セメント固化体流下側表面の極近傍から採取した土砂からは γ 線放射能が検出されたが、定量は不可能であった。この γ 線は、セメント固化体への封入核種量、セメント固化体からの浸出速度等から考えて、

^{60}Co 、 ^{137}Cs によるものと考えられる。模型地層解体時点（実験開始 1280 日後）の土砂中 ^{90}Sr 濃度分布を深さ 30 cm の水平断面について図-3.40 に、セメント固化体の中心を通り地層間隙水の流下方向に沿った縦断面について図-3.41 に示す。



図中の数値は ^{90}Sr 濃度 (pCi/g)

図-3.40 ^{90}Sr の地層（土壌）中濃度分布



図中の数値は ^{90}Sr 濃度 (pCi/g)

図-3.41 土壌中 ^{90}Sr 濃度の鉛直断面分布（1280 日後）

た縦断面について図-3.41 に示す。

^{90}Sr の土砂中濃度分布は、地層間隙水中の濃度分布とよく類似している。土砂中濃度分布と間隙水中濃度分布とを比較すると、間隙水の主方向流れと直角方向における等濃度域の広がり、間隙水中濃度の方がやや著しいといえる。これは、間隙水の採取を注射器で急激に行なったことにより、間隙水の高 ^{90}Sr 濃度域が強制的に拡大されたためであると思われる。図-3.37(D)の間隙水中 ^{90}Sr 濃度と図-3.40の土砂中 ^{90}Sr 濃度との間に平衡関係が成立しているものとすれば、間隙水中濃度に対する土砂中濃度の比として定義される平衡分配係数はほぼ 10ml/g であるといえよう。すなわち図-3.37(D)の ^{90}Sr 濃度分布を10倍すれば、ほぼ図-3.40の土砂中 ^{90}Sr 濃度分布を得ることができる。

(3) 濃度分布の定常性

寺島等^{(10),(12)}は、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co の普通ポルトランドセメント固化体からの浸出機構につい

での詳細な実験的・理論的研究を実施し、 ^{90}Sr の浸出機構についてはつぎのような研究成果を報告している。すなわち、セメント中に固化された ^{90}Sr の90%は水酸化物として、セメント水和物結晶中にとりこまれ、その浸出はセメント固化体表面の溶解や破壊によってのみ生じうること。このときのセメント表面の溶解速度係数 α は 2×10^{-6} cm/day であること。また、セメント固化体中の ^{90}Sr の10%はセメント水和物と結合状態になく濃度差による内部拡散（拡散係数 3.4×10^{-8} cm²/sec）によって浸出し、単位面積・単位時間当りの ^{90}Sr 溶出量 N $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$ と浸出可能な状態にある ^{90}Sr 量 M_m μCi との比が次式で与えられることを示している。

$$\frac{N}{M_m} = \frac{2D}{\pi R^3 h} \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left\{-\left(\frac{D\beta_n^2}{R^2} + \eta\right)t\right\} \quad \dots\dots\dots (3-8)$$

- ここに、 R : 固化体の半径 (9.8 cm)
- h : 固化体の高さ (50 cm)
- D : 内部拡散係数 (3.4×10^{-8} cm²/sec)
- t : 浸出時間 (day)
- η : 崩壊速度定数とセメント内での捕捉速度定数との和 (3.46×10^{-2} 1/day)
- β_n : $J_0(\beta) = 0$ の根

一方、セメントの溶解によって浸出する ^{90}Sr については、セメント中に固定されている ^{90}Sr の初期量を $M_f \mu\text{Ci}$ とすればその浸出速度比 N/M_f は次式で与えられる。

$$\frac{N}{M_f} = \alpha/\pi r^2 h \quad \dots\dots\dots (3-9)$$

浸出の初期には、セメントの溶解のみによって ^{90}Sr の浸出を説明できないことがあるが、数10日を経過すれば、セメントの溶解による核種の浸出は式(3-9)で精度よく説明できることが確かめられている。

セメント固化体への ^{90}Sr の封入量を $M_0 \mu\text{Ci}$ とすると、 $M_f = 0.9 M_0$ 、 $M_m = 0.1 M_0$ である。式(3-8)、式(3-9)を計算して、各々の ^{90}Sr 浸出速度比 N/M_0 を図-3.42に示す。図-3.42をみると、セメント固化体の溶解および内部拡散によって浸出する ^{90}Sr の浸出速度比（無次元フラックス）は、浸出開始後360日ではほぼ等しくなり、ほぼ400日～500日を経過すると、セメント固化体の溶解速度によって定まる一定値（ 1.85×10^{-8} $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$ ）になることがわかる。 ^{90}Sr の浸出がほぼ400日経過後に定常に達するというこの推定は、 ^{90}Sr の地層間隙水中濃度がこの頃にはほぼ定常になるとの実験結果（図-3.39参照）とも一致している。このことは、逆に、実験開始後400日～500日を経過した地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度分布がセメント固化体から浸出する ^{90}Sr 量に応じた定常分布であ

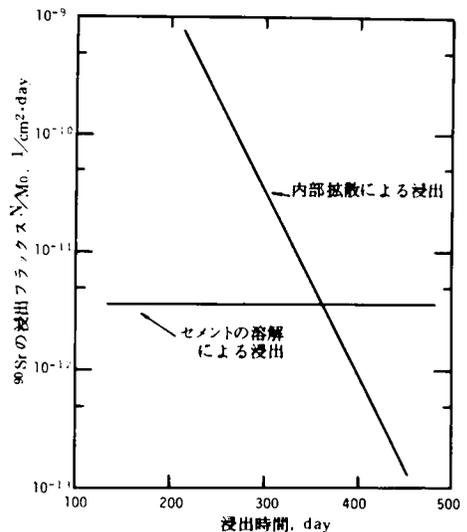


図-3.42 ^{90}Sr のセメント固化体からの浸出速度の比較

るとみなしうることを示している。

3.5.4 核種分布の予測

放射性核種の地中移動を記述する諸理論のうち、面的広がりをも有する帯水層に有効に適用できる可能性のある理論は井上の理論である(表-2.1参照)。前章でも触れたように、井上の理論によって、放射性核種の地中移動を予測する場合には2つの適用方法が考えられる。その1は、当該帯水層についての水理・地質・物理化学的特性を把握し、核種の移動を記述する基礎式(2-41)または式(2-44)を直接、計算機を用いて解く方法である。他の1は、適切なトレーサーを用いて地下水そのものの帯水層内での移動を把握し、式(2-45)によってトレーサーの移動の時間スケールを核種の移動の時間スケールに読み換えて、放射性核種の帯水層内での移動を予測する方法である。ここでは、この2つの方法によって ^{90}Sr の地層内濃度分布を推定し、それらを実測濃度分布と比較して、予測方法の妥当性を検証することにする。

(1) 数値解による方法

基礎式(2-44)を2次元化して、すなわち帯水層模型内での核種の移動現象が2次元的であるとみなして、式(3-10)を用いて核種の地層内濃度分布を推定する。

$$\frac{\partial C}{\partial T} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (v_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (v_y C) \quad \dots (3-10)$$

ただし、地層内間隙水の流速分布 v_x 、 v_y は前項(3.5.2)で述べた分布(図-3.33)を用いる。

① 数値解法

模型地層を格子間隔が $a (= \Delta x = \Delta y)$ の正方形格子網で覆い、基礎式(3-10)をCrank-Nicolson型の差分で近似する。輸送項についての差分は、流速が正の場合には後進型差分を、負の場合には前進型差分をとり、得られた差分近似式を連続過緩和法(S.O.R.)によって解くこととする。時間きざみを $\Delta T = h$ とすれば、例えば $v_x \geq 0$ 、 $v_y \geq 0$ の場合の基礎式の差分近似式は次のように与えられる。

$$C_{i,j}^{n+1} = C_{i,j}^{n+1} + \omega \cdot E_{i,j}$$

$$E_{i,j} = \frac{1}{\frac{a^2}{h} + A} \left\{ \left(\frac{a^2}{h} - A \right) C_{i,j}^n + B \left(C_{i+1,j}^{n+1} + C_{i+1,j}^n \right) + D \left(C_{i-1,j}^{n+1} + C_{i-1,j}^n \right) \right. \\ \left. + E \left(C_{i,j-1}^{n+1} + C_{i,j-1}^n \right) + F \left(C_{i,j+1}^{n+1} + C_{i,j+1}^n \right) \right\} - C_{i,j}^{n+1}$$

$$\text{ここに } A = \frac{1}{2} \left\{ D_x(i+1/2, j) + D_x(i-1/2, j) + D_y(i, j+1/2) + D_y(i, j-1/2) \right\} \\ + \frac{a}{2} \left\{ v_x(i-1/2, j) + v_y(i, j-1/2) \right\}$$

$$B = \frac{1}{2} D_x(i+1/2, j)$$

$$D = \frac{1}{2} D_x(i-1/2, j) + \frac{a}{2} v_x(i-1/2, j)$$

$$E = \frac{1}{2} D_y(i, j - 1/2) + \frac{a}{2} v_y(i, j - 1/2)$$

$$F = \frac{1}{2} D_y(i, j + 1/2)$$

ただし、 $C_{i,j}^n$ は時刻 $T (= n \cdot \Delta T)$ における格子点 $(i, j) = (i \Delta x, j \Delta y)$ での放射性核種の地下水中濃度を、 $E_{i,j}$ は格子点 (i, j) における繰り返し計算の補正量を、 ω は緩和係数を表わす。また、例えば $D_x(i + 1/2, j)$ は格子点 (i, j) と $(i + 1, j)$ との中間位置における拡散係数である。本報告では各格子点における拡散係数を次式によって与えた。(51),(52)

$$\begin{cases} D_x = D_m | v_x | + D_d \\ D_y = D_m | v_y | + D_d \end{cases} \dots\dots\dots (3-11)$$

ここに、 D_m : 標準拡散係数

D_d : 分子拡散係数

数値計算の実行に際して用いた境界条件はつぎのとおりである。

1) 模型地層への流入端では

$$C_{i,j}^{n+1} = 0$$

2) 模型地層の流出端では濃度勾配が線型、つまり

$$E_{i,j} = 2(C_{i-1,j}^{n+1} + C_{i-1,j}^n) - (C_{i-2,j}^{n+1} + C_{i-2,j}^n) - (C_{i,j}^{n+1} + C_{i,j}^n)$$

3) 模型地層の側壁では濃度勾配がゼロ、つまり

$$E_{i,j} = \frac{4(C_{i,j-1}^{n+1} + C_{i,j-1}^n) - (C_{i,j-2}^{n+1} + C_{i,j-2}^n)}{3} - (C_{i,j}^{n+1} + C_{i,j}^n)$$

4) 模型地層の中心軸では濃度勾配がゼロ、つまり

$$E_{i,j} = \frac{4(C_{i,j+1}^{n+1} + C_{i,j+1}^n) - (C_{i,j+2}^{n+1} + C_{i,j+2}^n)}{3} - (C_{i,j}^{n+1} + C_{i,j}^n)$$

5) 固化体表面では、濃度の実測値を与える。

また、初期条件として、模型地層内の全ての格子点における核種濃度をゼロとした。式(3-10)によって放射性核種の地層内分布を推定する場合に用いる計算のフローチャートを図-3.43に示す。

②濃度分布の推定

すでに述べたように、模型地層中に設置したセメント固化体から浸出する放射性核種の地層内での移行を調べた実験の継続時間は約3.5年(1,280日)と長く、この間に地層流入口における地下水の間隙平均流速は120 cm/day ~ 20 cm/dayの範囲で変化し、時間の経過と共に漸減の傾向にあった。ここでは、間隙平均流速が30 ± 10 cm/dayの範囲にあり比較的一定であった実験開始後1年~3.5年の期間の⁹⁰Srの移動について検討する。解析に必要な地層の特性値はつぎのとおりである。模型地層を構成する砂と同じ砂を用いて、カラム法で実測した標準拡散係数 D_m は0.25 cm²/hr、また分子拡散係数 D_d は0.036 cm²/hrとした。地層を覆った正方形格子網の格子幅 Δx 、 Δy を1.25 cm、時間ステップ幅 ΔT を0.5 hrとした。計算に際して用いたセメント固化体表面での間隙水中⁹⁰Sr濃度分布を

図-3.44 に示す。同図では放射方向の長さがその位置での ^{90}Sr 濃度を表している。

数値解析によって得た地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度の分布を98日後、239日後、488日後および平衡状態について図-3.45 (A)～(D) に示す。図に示す数値解による ^{90}Sr 濃度分布は、流れと直角方向の濃度の拡がり著しくなく、特に地層の中心軸(対称軸)に沿って流れ方向への濃度分布の拡がり著しい。平衡状態について、 ^{90}Sr の地層間隙水中濃度分布の実測値と数値計算による予測値とを図-3.46 に示す。予測濃度分布の等濃度域は、実測濃度分布に比べると、特に流下方向への拡がり大きく、両者はあまり一致していない。予測による ^{90}Sr の地層移動速度は実測速度よりもかなり速い。

(2) 井上の理論による方法

まず、模型地層内での ^{90}Sr の移動速度について考える。井上の理論によると、第2章で詳しく紹介したように、 ^{90}Sr が一定距離を移動するのに要する時間 T は、地下水の移動に要する時間 t の Kf 倍になる。実験開始直後の地層流出水中の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度とはほぼ同じ濃度条件下で測定した ^{90}Sr の分配係数は $kd = 4.9\text{ml/g}$ (表-

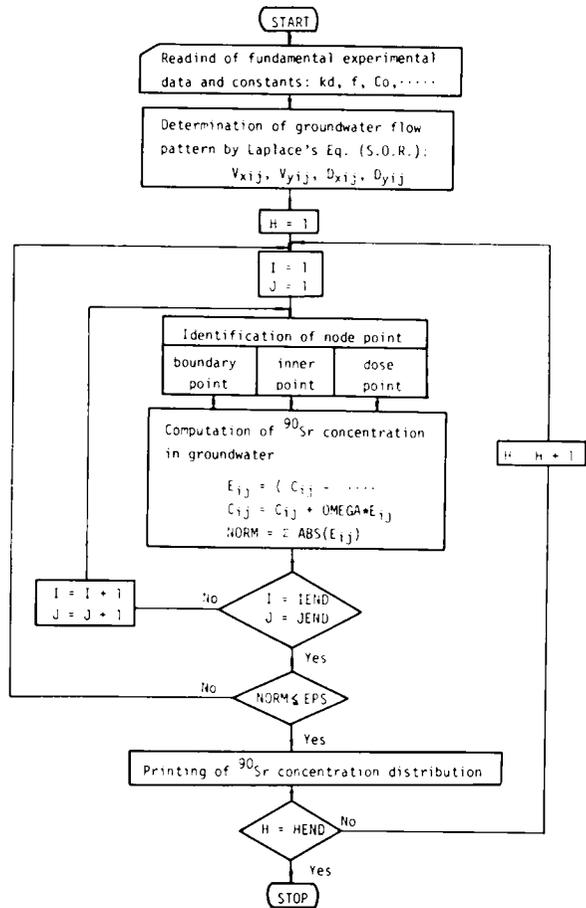


図-3.43 ^{90}Sr の地層内濃度分布を推定するためのフロー・チャート

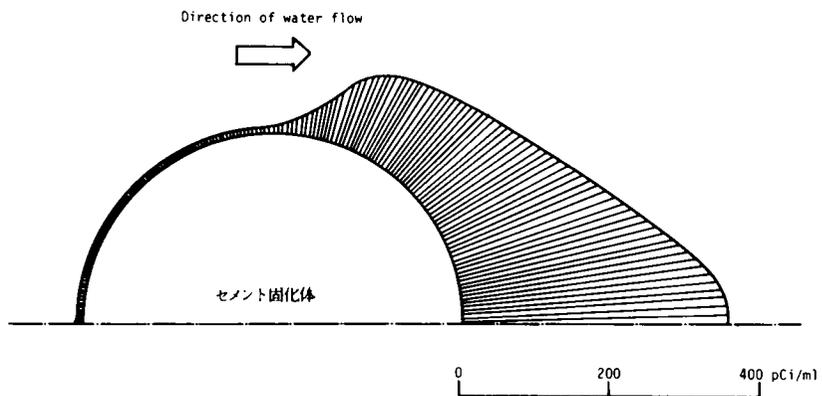
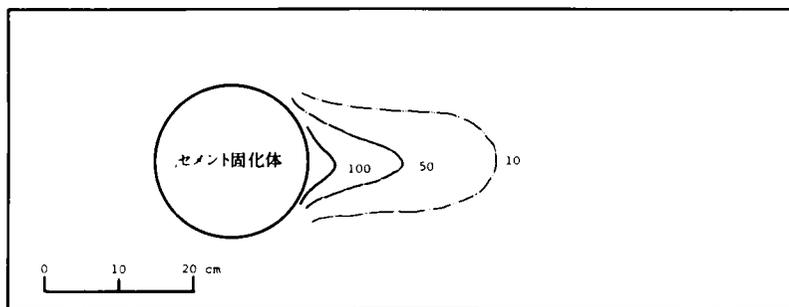
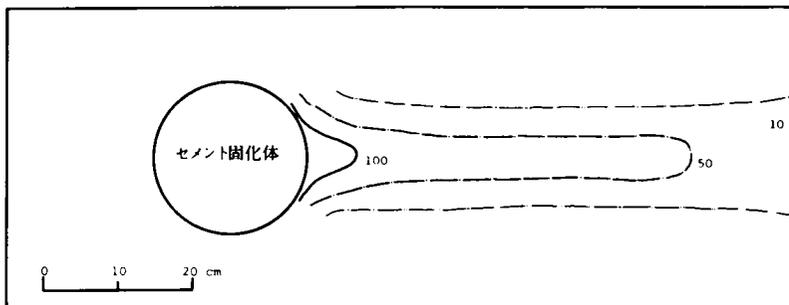


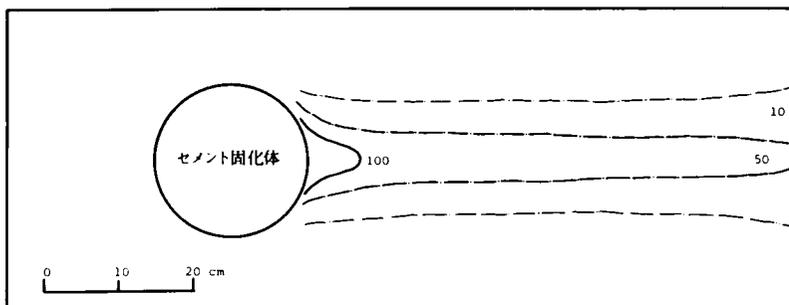
図-3.44 セメント固化体表面での間隙水中 ^{90}Sr 濃度分布



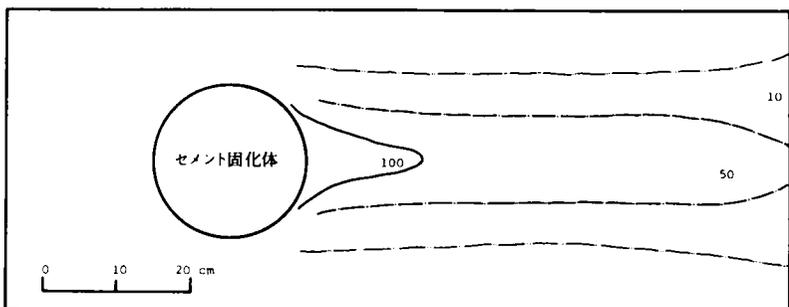
(A) 98日後



(B) 293日後



(C) 488日後



(D) 平衡濃度分布

図-3.45 数値解析による地層間隙水中⁹⁰Sr濃度分布(濃度の単位はpCi/ml)

3.17 参照) であり、模型地層の空隙率は $f = 0.356$ 、用いた土砂の密度は $\rho = 2.64 \text{ g/cm}^3$ であったから、式(2-45)より $Kf = 24$ 、すなわち⁹⁰Srの移動に要する時間は $t = 24 T$ となる。すでに述べたように実験開始時の地層間隙水の間隙平均流速は $506 \pm 40 \text{ cm/day}$ 固化体中心から地層流出端までの距離は 75 cm であるから $T = 0.148 \pm 0.012 \text{ day}$ となる。故に⁹⁰Srが地層流出端において初めて検出されるまでに要する時間は $t = 3.6 \pm 0.3 \text{ day}$ と推定される。ただし、ここではセメント固化体からの⁹⁰Srの浸出に時間遅れはないものと仮定している。一方、実験開始後4日目に、セメント固化体から60cm流下側の間隙水中に⁹⁰Srが検出されていること(図

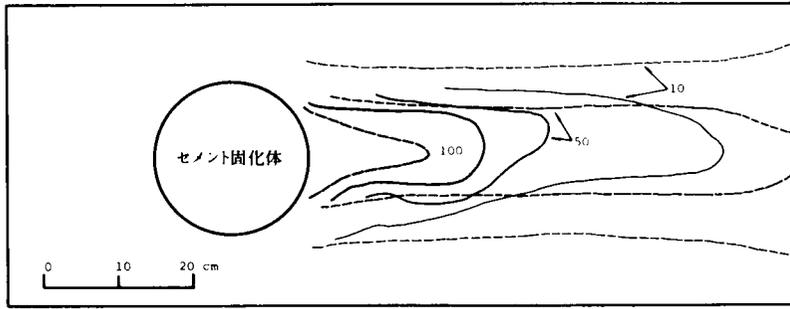


図-3.46 実測⁹⁰Sr濃度分布と数値解による予測濃度分布の比較(平衡状態)
(実線は実測濃度を、破線は予測濃度を示す。濃度の単位はpCi/ml)

- 3.39 参照) から、⁹⁰Sr が地層流出端に到達するに要した時間は4日~5日であったといえる。⁹⁰Srの移動に要する時間の推定値は実際に⁹⁰Srが移動するのに要した時間

とほぼ一致しているといえよう。

すでに述べたように、HTOの地層間隙水中濃度分布と⁹⁰Srの濃度分布とは時間軸について相似である。特に、平衡状態においては両者は一致する筈である。ところで、セメント固化体内での⁹⁰Srの分布は、セメント固化体の作製条件からほぼ一様と考えることができるから、セメント固化体表面から浸出する⁹⁰Srの浸出速度は固化体表面の位置によらずほぼ一定であると考えられる。図-3.44は、セメント固化体の上流側表面では⁹⁰Srの間隙水中濃度は低く、下流側表面で高いことを示している。このことは、固化体上流側表面で浸出した⁹⁰Srが、地層間隙水とともに固化体の表面に沿って移動した後、固化体の下流側表面で固化体から離れて地層中へ移行する傾向があることを意味する。この推定は、図-3.37において⁹⁰Srの濃度100 pCi/mlの等濃度線が固化体下流側の地層模型中心軸付近でのみ検出されていることから妥当であると思われる。理論的には、固化体表面に沿う地層間隙水の流線は、注入位置D(図-3.34参照)で固化体を離れ、地層中心軸に沿って流下する。一方、図-3.36よりわかるように、注入点A(図-3.34参照)から注入された $3.5 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ のHTOは、固化体表面で⁹⁰Srと同様の挙動を示す。すなわち、 $2.8 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ のHTO等濃度線は、当初は注入点付近に検知される(図-3.36(A))が、やがて固化体表面に沿って移動した後注入点Dの付近で固化体を離れ(図-3.36(B))、やがてその等濃度線で囲まれる領域を拡くする(図-3.36(C),(D))。さらに、HTOを注入点Dから注入した場合の濃度分布を示す。図-3.35において、 $3.5 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ の等濃度線が注入点Dの周囲に広範囲に出現することを併せて考えると、固化体の下流側表面に注入されるHTOは注入点D付近に帯留した後で地層内を流下する傾向があることがわかる。それゆえ、HTOと⁹⁰Srとでは供給方法が異なるが地層への移行状態が類似していることから、固化体表面を離れて地層中へ移行する固化体表面付近の地層間隙水の挙動を注入点Dから注入したHTOの挙動で代表させ、図-3.35(D)で与えられるHTOの平衡濃度分布から⁹⁰Srの平衡濃度分布を推定することにする。

地層間隙水中の核種濃度をC、地層へ供給される核種濃度をC₀とすれば $(C/C_0)^{90}\text{Sr}$ と (C/C_0) HTOとは一致する筈である。HTOの注入濃度C₀は $3.5 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ である。図-3.44より、⁹⁰Srの固化体周辺での平均濃度を算出するとほぼ98 pCi/mlとなる。ここでは固化体表面での⁹⁰Sr濃度C₀としてこの値を用いることにする。セメント固化体から一様に浸出した⁹⁰Srが固化体表面に沿って移動した後固化体の流下側に帯留すると考えれば、⁹⁰Srの濃度C₀として98 pCi/mlを用い

でも妥当であろう。
 ^{90}Sr の地層間隙水中濃度の実測分布と、 HTO の分布から推定した推定濃度分布とを図-3.47に示す。図は平衡状態の理論、実測両濃度分布を示している。

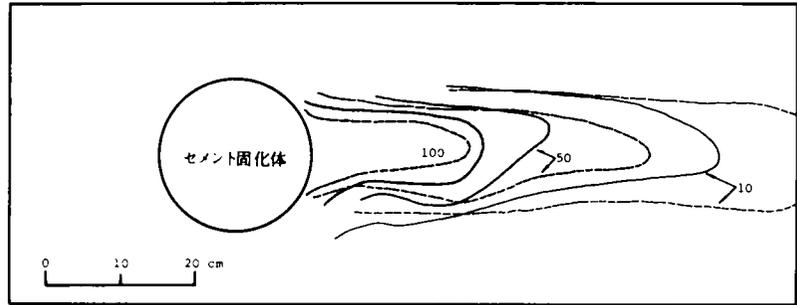


図-3.47 実測 ^{90}Sr 濃度分布と井上の理論による予測濃度分布の比較(平衡状態)(実線は実測濃度を、破線は予測濃度を示す。濃度の単位は pCi/ml)

3.5.5 考 察

土壌カラムを用いて測定した ^{90}Sr の分配係数値 4.9ml/g (表-3.17)と、 ^{90}Sr の地層間隙水中濃度分布(図-3.37(D))と土壌中濃度分布(図-3.40)とを比較して得た分配係数値 10ml/g とは一致しなかった。2つの分配係数値が一致しなかった原因としては、①カラム実験の土壌カラム間隙水中の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度の方が実験終了時の地層間隙水中 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度よりも約 0.15meq/l だけ大きいこと、②間隙水の流速がカラム実験の方が約2桁大きいこと、③地層間隙水の pH は土壌カラム間隙水の pH よりも約1.0大きいこと、および、④地層実験の継続時間はカラム実験の通水時間よりほぼ 10^4 倍長いことを挙げることができる。試料砂はカルシウム過剰土壌であるから、本章第2節の結論によれば ^{90}Sr の分配係数値は水中の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度との相関が強い。地層間隙水の pH は土壌カラム間隙水よりも大きい、表-3.9より試料土壌Aの分配係数値は pH との相関が認められないので、 pH の差異による分配係数値の変化は考えなくてもよい。図-3.5(A)を用いて、カラム実験によって得た k_d 値($\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度 1.58meq/l)を地層実験の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度(1.73meq/l)における値に補正しても高々 5.9ml/g になるにすぎない。このことは、2つの k_d 値の差異が $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度の差異以外の影響を複合的にうけていることを示している。

カラム実験の間隙平均流速は 86m/day ($1.97\text{ml/cm}^2\cdot\text{min}$)、地層実験の間隙平均流速は $0.3 \pm 0.1\text{m/day}$ であった。本章第2節で流速と k_d 値との相関について調べた実験の流速範囲は $2.2 \sim 37.9\text{m/day}$ であるから、その結論をここに適用することはできない。ただし、定性的には流速が小さい程 k_d 値は大きくなると考えられるから、2つの分配係数値の差異の幾分かがこの流速の差異に起因しないとはいえない。最後の要因として、カラム実験と地層実験とではその継続時間がほぼ 10^4 倍も異なることを挙げる必要がある。本論文では、放射性核種と土壌との不可逆反応および反応の長期間にわたる蓄積効果あるいは生物作用の介在等については全く考慮していない。これらの要因について定量的に検討するための基礎データを持たないが、これらの事項は汚染土壌の汚染からの回復、土壌に不可逆的に保持固定され人間の生活環境へ戻る可能性がない放射性物質等を評価する場合に極めて重要な役割を果す。今後の検討課題である。

基礎式(3-10)を数値的に解いて得た ^{90}Sr の推定濃度分布は実測濃度分布とあまり一致しなかった(図-3.46参照)。この濃度分布パターンの差異が、 ^{90}Sr の土壌への吸着特性を表わす分配係

数値を変化させて数値実験を行なっても各々の分布パターンを一致させ得ないことから、分配係数値の評価誤差に起因するとは考えられない。第1に考えられる要因は、模型地層内における地下水流況の非一様性である。トレーサー法によって実測した実測濃度分布とラプラスの式(3-6)から推定した推定流速分布とは、間隙流速の測定精度範囲(±25%)内ではほぼ一致してはいるが、局部的に、とりわけ固化体の下流側で、数値的に予測される流速分布から、実際の分布が偏っていることも考えられる。また、セメント固化体の表面は必ずしも滑らかではなく、固化体から浸出したCa、Mg等が再び固化体表面付近で固化し、固化体周辺での流れの様相を乱していることが観測される。数値解法によって ^{90}Sr の濃度分布を推定するためには、現実の地下水流速の分布を精度よく推定あるいは実測する必要があるが、現在では数10 cm/day程度の微流速を局部的に精度よく測定する手法はほとんど開発されていない。地層の特性を正確に把握し、数値解析に用いる基礎データの信頼度を改善する努力が必要である。

第2に考えられる要因として、濃度予測に用いた2次元数学モデルが妥当であるか否かの問題がある。すでに述べたように地層内には局部的に鉛直(深さ)方向の流速があり、このため ^{90}Sr の間隙水中濃度分布も鉛直方向に一律ではない。この事実は3次元モデルについても検討する必要があることを示唆している。

井上の理論による ^{90}Sr の間隙水中平衡濃度の予測値と実測濃度分布とはよく一致している。 HTO 濃度の分布は HTO の注入開始後約2週間で平衡状態に達するから、 ^{90}Sr の予測平衡濃度は約2週間で得ることができる。一方、 ^{90}Sr の実測平衡濃度分布は約3.5年後に得られたものであるから、 HTO の濃度分布から ^{90}Sr の濃度分布を推定する方法は実用性を失うことがない。 ^{90}Sr の分配係数値として、地層実験によって得た値 10ml/g を用いれば、土壌密度 ρ が 2.64 g/cm^3 、地層の空隙率 f が 0.356 であるから式(2-45)より $Kf=50$ となる。すなわち、少くとも約 $1/50$ の時間の実験で ^{90}Sr の平衡分布を予測できることになる。*本方法による予測濃度分布が実測濃度分布とよく一致する原因としては以下を挙げることができよう。すなわち、仮に地層が不均一であったり、間隙水の流速分布が局部的に一律でない場合でも、 HTO はそれらの影響を反映した濃度分布を呈する。 HTO の濃度分布は地層の種々の特性を全て考慮して実験的に解いた基礎式(2-44)の解であるといえる。それ故、本方法による予測濃度分布は実測分布とよく一致する。 HTO の地層間隙水中濃度は平衡状態においても時刻と共にバラついたり、ゆらいだりするため、図-3.47の実測値と予測値との差異は有意であるとはいえない。

図-3.35(A)~(D)で与えられる HTO の濃度分布は各々73日後、170日後、268日後および平衡状態での ^{90}Sr の濃度分布に対応することになる。

3.5.6 ま と め

本節の検討によって明らかになった結論を整理するとつぎのようになる。

(1) 実験継続期間(約3.5年)中にセメント固化体から浸出し、模型地層中を移動した放射性核種は、

* ^{90}Sr の地層からの流出時間を評価する場合には、実験開始時の kd を用いるのが妥当であるからカラム実験による 4.9ml/g を、また平衡濃度分布を得る場合には実験終了期の kd を用いるのが妥当であるから地層実験による 10ml/g を用いた。

セメント固化体中に封入した ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{54}Mn , ^{59}Fe , ^{65}Zn , ^{110m}Ag の7核種の内 ^{90}Sr とその娘核種である ^{90}Y であった。その他の核種は模型帯水層中での移動を確認することができなかった。

(2) ^{90}Sr のセメント固化体からの大きな初期浸出の効果を反映して、地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度は実験開始直後には特に大きかった。しかし、固化体からの ^{90}Sr の初期浸出の影響はセメント固化体からの流下距離が大きくなるにつれて急激に低減する(図-3.39 参照)。このことは、土砂が高濃度の放射性核種を平均化する能力(緩衝能力)が大きいことを示している。それ故、放射性廃棄物のセメント固化体を地中処分する場合には、固化体からの核種の平均浸出量を用いて安全性を評価することができよう。

(3) ^{90}Sr のセメント固化体からの浸出は浸出開始後はほぼ400～500日で定常に達すると考えられる。したがって、この期間を経過した後の地層間隙水中 ^{90}Sr の濃度分布は、セメント固化体からの浸出量と地層間隙水の流速分布とに応じた定常分布であるといえる。

(4) 模型地層流出液中の pH 、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度、酸消費量($\text{pH}5$)は ^{90}Sr の検出に先だって著しい変動を示した(図-3.32, 図-3.39 参照)。特に pH の変動は著しく、この性質は廃棄物地中処分場周辺での核種移動を監視する予測指標として利用できる可能性がある。さらに詳しい検討が必要である。

(5) ^{90}Sr が地層流出端に到達するのに要する時間は、分配係数値と K_f 値とを用いる方法によりほぼ予測することができた。予測誤差は安全性を評価する場合には安全側に現われる。

(6) 土壌カラムを用いて測定した分配係数値よりも、帯水層模型を用いての長期間の実験によって得られた分配係数値の方が大きかった。このことは、土壌カラムによって測定した分配係数値を用いて、廃棄物地中処分場の安全性を評価すると、評価値(例えば、内部被曝線量)が現実の値よりも大きく評価されること、つまり評価誤差は安全側に現われることを意味する。

(7) 長半減期核種の地下帯水層中での移動は、地下水そのものの移動を把握することによって予測することができ、この予測方法は、地下水の移動を基礎式を数値解析することによって把握するか、 HTO 等のトレーサーを用いて把握するかによって2つに区分される。前者が基礎式を数学的に解くのに対し、後者は基礎式を現象面から実験的に解くことに対応する。

(8) 模型地層内での ^{90}Sr の移動(濃度分布)を予測するのに、基礎式を数値的に解く方法を採用すれば、地層特性値が変化した場合等種々の場合を想定しても迅速に予測値が得られるため極めて有利である。しかしながら、その予測精度については現在なお難点がある。地層の特性値をより正確に計算条件に織り込む他、予測モデルそのものの妥当性についても、引き続き検討する必要がある。

(9) HTO トレーサーの濃度分布を用いて推定した ^{90}Sr の予測濃度分布は実測濃度分布とよく一致した。予測濃度分布を得るのに要する時間は、数値解析による予測に要する時間に比べると長い。が、 ^{90}Sr が実際に移行するのに要する時間のほぼ1/50程度となる。すなわち、50年後の ^{90}Sr の予測濃度分布を得るにはほぼ1年間のトレーサー実験を行えばよいことになる。本方法は、地層の特性値を必ずしも明らかにする必要はなく、実用性が大きい予測方法であるといえよう。

3.6 通気層模型における放射性核種の移動

—— 地層浸透液中に放射性核種が含まれる場合 ——

放射性廃棄物の地中処分あるいは陸上保管には通常は通気層が用いられる。しかしながら、通気層における放射性核種の挙動については、核種の輸送媒体である土壌水分の挙動を定量化することが複雑かつ困難である^{(53)~(56)} こともあって、帯水層における核種移動には研究が進んでおらず、研究成果の報告例も少ない。通気層における核種移動に関する研究と異なり、この分野の研究では、野外における核種移動に重点を置いたものは少なく、^{(57),(58)} 実験室規模の実験によって核種移動を定量化することに重点を置いたものが多い。^{(59)~(62)}

本節で行なう研究は後者の区分に属する。従来の研究によって、通気層は廃棄物地中処分法の安全性を向上させるのに非常に重要な役割を果たすと考えられているにもかかわらず、従来の安全性評価においては、通気層が放射性核種を保持・固定する効果は全く無視されてきたといっても過言ではない。本節では、まず、放射性核種を含む廃液が地表面から通気層中へ浸透する場合を想定して、放射性廃液が漏出する場合の安全性を評価する場合に重要であると思われる^{90Sr}および^{60Co}を含む模擬廃液を模型通気層に通水し、これらの核種がどのような挙動を示すかを実験的に把握する。ついでこれらの核種の地層内分布を予測することを試みる。本実験は事故によって放射性廃液が地表に漏出したり、廃液を地層中へ浸透処分したりする場合を想定しており、通気層のもつ保持・固定能を正しく評価するための知見を得ることを目的としている。

3.6.1 実験方法

(1) 実験装置の概要

実験に用いた通気層模型実験装置を図-3.48に示す。装置は肉厚約1cm直径50cm、高さ30cmの亚克力製フランジ管を任意の段数積み重ねることによって構成される。本研究では5段積みとした。実験装置の上部には長さ40cmのスプリンクラーが取り付けられており、核種を含む水道水を雨滴状に供給することができる。スプリンクラーへの水道水の供給には2連式の定流量ポンプを用いた。スプリンクラーの回転周期と定流量ポンプの吐出周期との間には位相のずれがあるた

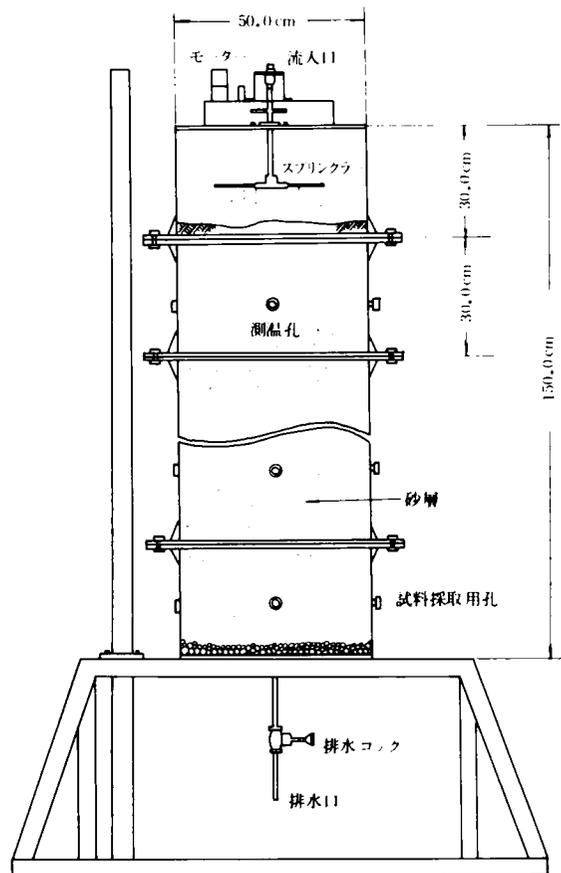


図-3.48 通気層模型実験装置（廃液浸透実験）

め、給水時間を長くすることにより通気層に時間的にはほぼ様な給水を行なうことができる。ただし、スプリンクラーには等間隔(1cm)に細孔を穿っているため通気層への給水量は地層中心から半径方向に図-3.49に示すような分布を有している。各フランジ管には層内温度測定用の測温抵抗体の挿入口、試料砂採取口が設けられており、試料砂採取口からは1回につき0.1~10gの充填砂を採取することができる。

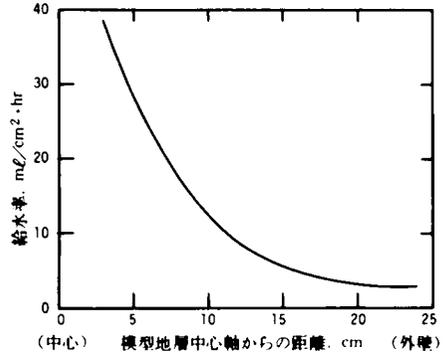


図-3.49 模擬廃液の供給強度分布

図-3.48の実験装置に日本原子力研究所・東海研究所構内において採取した主として珪砂から成る粗砂

(密度 2.67 gr/cm^3 、有効径 0.51 mm 、均等係数 2.0 、酢酸アンモニウム法による陽イオン交換容量 $9.44 \mu\text{eq/gr}$) 約 430 kg を高さ 138 cm 、平均空隙率 41.7% になるように充填した。砂層の下部には排水を良好にするため砂礫を厚さ 5 cm に敷きつめた。地層底部に地層浸透水が帯水し地下水面を形成することはない。したがって本通気層模型は地下水位が十分に深い場合の現実の地層を模しているものといえよう。実験開始前の通気層の飽和度*は地層表面から深さ 8.4 cm の位置で 8.0% 、 37.4 cm の位置で 10.8% 、 67.4 cm の位置で 13.3% であり、深さとともにやや増加する傾向にある。地層の飽和透水係数は約 $1.1 \times 10^{-1} \text{ cm/sec}$ ($3.9 \times 10^2 \text{ cm/hr}$)である。

表-3.2に示す水質の水道水に ^{90}Sr 、 ^{60}Co および三重水素水を混入して模擬廃水とした。 ^{90}Sr 、 ^{60}Co は無相体(塩化物)で用いた。三重水素水(HTO)は地層内での水の拡散状態を調べるために使用した。模擬廃水を4区分に分画し、第2区分には HTO を混入しないものを用いた。これは後に述べるように飽和度が上昇する場合の水の拡散現象と、飽和度一定の場合での水の拡散現象とを比較することを目的としている。各区分の核種濃度を表-3.18に示す。 ^{90}Sr 、 ^{60}Co の濃度は区分によらずほぼ一定である。模擬廃液の給水総量は 204ℓ 、通気層からの排水総量は約 199ℓ 、給水継続時間は約14時間である。給

表-3.18 模擬廃液の給水区分とその性質

| 給水区分 | 容 積 (ℓ) | 累積量 (ℓ) | 放射性核種の濃度 ($\mu\text{Ci/ml}$) | | |
|------|-------------------|-------------------|--------------------------------|----------------------|----------------------|
| | | | HTO | ^{90}Sr | ^{60}Co |
| 1st | 51 | 51 | 1.4×10^{-2} | 2.2×10^{-3} | 1.6×10^{-3} |
| 2nd | 51 | 102 | 0 | 2.3×10^{-3} | 1.4×10^{-3} |
| 3rd | 51 | 153 | 1.4×10^{-2} | 2.4×10^{-3} | 1.5×10^{-3} |
| 4th | 51 | 204 | 1.4×10^{-2} | 2.0×10^{-3} | 1.7×10^{-3} |
| 平均 | 51 | | | 2.2×10^{-3} | 1.6×10^{-3} |

(注) 模擬廃液は給水区分の番号順に通気層模型に給水された。核種は無担体で使用した。

水開始12時間後に給水速度が減少するまでの断面平均給水速度は $8.07 \text{ ml/cm}^2 \cdot \text{hr}$ 、浸透水の平均間隙流速は 59.3 cm/hr 、一方、給水開始12時間後より給水停止までの平均給水速度は 7.42 ml/cm^2

$\cdot \text{hr}$ である。実験経過を整理して表-3.19に示す。採用した実験条件下では廃液の給水速度に比べて地層の透水係数が十分に大きいため、地層表面に廃水が湛水することはない。地層内での水分移動

* 地層の間隙容積中に占める土水分の割合。容積比または容積百分率で表示する。

表 - 3.19 実験の時間経過

| 経過時間 (hrs) | | 給水速度 ml/cm ² ·hr | 給・排水量 (ℓ) | | 実験操作 |
|------------|-------|--------------------------------|-----------|--------|-------------|
| 通水開始後 | 排水開始後 | | 給水 | 排水 | |
| 0.00 | | 8.07 | | | 給水開始 (第1区分) |
| 2.08 | 0.00 | 8.07 | 32.85 | 0.00 | 排水開始 |
| 3.25 | 1.18 | 8.07 | 51.45 | 17.87 | 給水開始 (第2区分) |
| 6.47 | 4.39 | 8.07 | 102.37 | 69.53 | 給水開始 (第3区分) |
| 9.70 | 7.63 | 8.07 | 153.68 | 120.73 | 給水開始 (第4区分) |
| 12.07 | 9.99 | 3.34 | 191.07 | 159.90 | 給水速度低減 |
| 14.04 | 11.97 | 3.34 | 204.00 | 180.97 | 給水停止 |

は、水分の拡散現象に比べ浸透現象が卓越するものと思われる。また実験条件下においては廃水を連続的に給水するため、土壌水分の分配に関してヒステリシス現象は生じないものと考えられる。⁽⁶³⁾

(2) 地層内飽和度の変化

通気層の特徴は、帯水層のように地層間隙が水で飽和されているのではなく、給水速度や給水継続時間によって飽和度が変化することにあるといえる。通気層での核種の移動について検討する場合には、地層内の空隙がどの程度水で飽和されているか (飽和度)、また廃水の浸透と共に飽和度がどのように変化し、それが核種の移動にどのような影響をおよぼすかを把握する必要がある。廃水の浸透現象を乱さず、しかも連続的に通気層の飽和度を測定記録するために、微小変位計に記録計を接続して実験に使用した。微小変位計は、アクリル製フランジ管の外壁に1組 (2枚) の電極を貼り付け、廃水が浸透することによって変化する地層の飽和度の変化を電極間の静電容量の変化として読み出す計器である。電極は厚さ3mmの銅板を用い、長方形・正方形・円形等々の形状・寸法のものを作成し、微小変位計の測定感度を良好にするものを選んだ。実験に用いた電極の寸法および取付位置を表-3.20に示す。

表 - 3.20 飽和度測定用電極とその取付位置

| 測定位置 | 地層表面からの深さcm | 電極間距離 cm | 電極の大きさcm | |
|-----------|-------------|-------------|----------|------|
| | | | 高さ | 幅 |
| Station A | 8.4 | 10.1 | 1.45 | 0.70 |
| | | | 1.60 | 0.70 |
| Station B | 37.4 | 10.7 | 2.20 | 0.40 |
| | | | 2.20 | 0.45 |
| Station C | 67.4 | 11.0 | 1.50 | 1.50 |
| | | | 0.70 | 0.65 |

微小変位計による飽和度測定に必要な検定曲線は、一定速度で水道水を地層に供給し、微小変位計の読みが平衡した後、試料砂採取孔から土砂を採取し、乾燥器(110℃)で乾燥し、乾燥時・湿潤時の重量の差から飽和度を算出することによって作製した。検定曲線の1例 (station-A) を図-3.50

に示す。飽和度を測定する本方法は、測定対象の地層を乱さない利点を有するが、後に述べるように地層浸透水の水质が大きく変化する場合には、それに応じて測定誤差が大きくなる欠点を有している。

(3) 地層内温度の変化

実験中の温度変化を測定するために測温低抗体と打点式記録計を使用した。地層内の5ヶ所および地層外の気温 (室温) 合計6ヶ所の温度を各々30秒毎に自動的に測定・記録した。

(4) 地層間隙水の拡散

地層内での水の拡散状態を調べるために、地層に供給する廃水に三重水素水を混入し、地層流出液中の三重水素水濃度を測定した。地層の飽和度が増加するときの水の拡散状態、地層の飽和度がほぼ一定のときの水の拡散状態を調べるため、廃液を4区分し、第2区分には三重水素水を混入しなかった(表-3.18参照)。

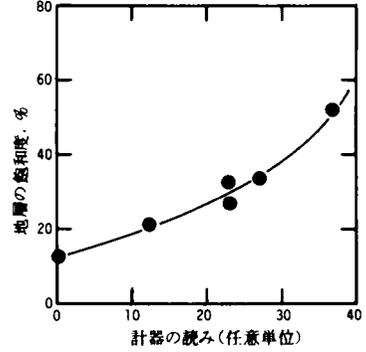


図-3.50 飽和度測定装置の検定曲線 (Station - A)

(5) 土壌水分移動特性値の測定

① 土壌水分拡散係数 $D(\theta)$ の測定

図-3.51 に示す実験装置 (アクリル製のカラム・セグメント, 内径 27mm, 長さ 30mm を 30ヶ水平に連結し、一端に給

水装置を設けたもの) に前節の実験で用いた砂を空隙率が 0.38 ~ 0.40 になるように充填し、カラムの一端から一定時間水道水を供給する。カラムの給水側の端は空隙が水で飽和されるようにし、他端は開放しておく。一定時間の水の供給後ただちにカラムを解体し、各カラムセグメント中の土壌の土壌水分 θ を測定し、カラムの水道水供給端からの距離 x と θ と

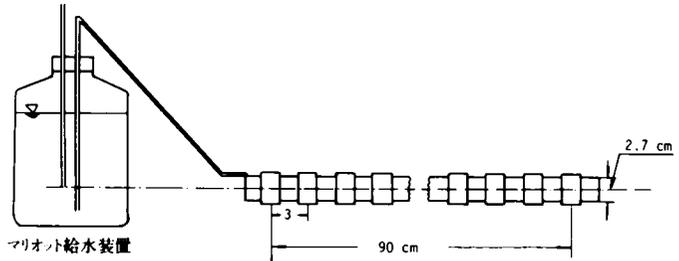


図-3.51 $D(\theta)$, $\lambda(\theta)$ の測定装置

の関係を図示すれば、同図より土壌水分拡散係数 $D(\theta)$ は次式を用いて算出することができる。(14)

$$D(\theta) = - \frac{1}{2T} \left(\frac{dx}{d\theta} \right)_{\theta} \int_{\theta_0}^{\theta} x d\theta \quad \dots\dots\dots (3-12)$$

ここに、 T : 実験継続時間

θ_0 : 初期の土壌水分量

$(dx/d\theta)_{\theta}$: 土壌水分が θ のときの $(dx/d\theta)$ 値

② 不飽和透水係数 $\lambda(\theta)$ の測定法

式(2-51)を $\lambda(\theta)$ について解くと次式を得る。

$$\lambda(\theta) = D(\theta) / \frac{\partial \psi}{\partial \theta} \quad \dots\dots\dots (3-13)$$

したがって、土柱法⁽⁶⁵⁾によって、毛管ポテンシャル ψ と土壌水分 θ との関係を知れば、すでに測定した $D(\theta)$ を用いて、式(3-13)から、不飽和透水係数 $\lambda(\theta)$ を得ることができる。

(6) 放射性核種の地層内分布

地層からの流出液を1定時間毎に採取し、液体シンチレーション・カウンターで三重水素水濃度を、 γ 線波高分析器で γ 線放射能を 2π ガスフロー・カウンターで β 線放射能を測定した。 γ 線エネルギー・スペクトルから ^{60}Co の濃度を決定し、全 β 線放射能から ^{60}Co の β 線放射能寄与分を差し引い

て $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ 濃度を決定し、さらに放射平衡時の β 線放射能を測定して ^{90}Sr と ^{90}Y とを分離した。給・排水終了後、地層模型を分解して任意の位置から試料砂を採取し、これに 1N-HCl を加え ^{60}Co 、 ^{90}Sr を溶離させた後、 β 、 γ 線放射能を測定して上述の方法で各々の核種濃度を決定し、ついで ^{60}Co 、 ^{90}Sr の地層内分布を推定した。 1N-HCl 溶液による ^{60}Co 、 ^{90}Sr の溶離率は各々96.2%、94.7%であった。

なお、実験に際しては、地層流出水について放射性核種の地層内での移動に重要な影響を及ぼすと考えられる水質因子である、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度、酸消費量($\text{pH}5$)、 pH を測定した。地層に供給した廃水が土砂と接触すると、浸透水の水質が変化する。特に、放射性核種の地層内での移動について検討する場合には、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度の変化に注意する必要がある。放射性核種の分配係数値は浸透水の水質が変化することにより大きく変化するからである。

3.6.2 地層の特性

(1) 温度分布および地層流出水の水質変化

実験継続中の温度は気温が $20 \sim 30^\circ\text{C}$ また水温は $15 \sim 20^\circ\text{C}$ の範囲で変動した。

地層流出水中の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度および pH の変化を図-3.52に示す。地層流入水の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度は $1.53\text{meq}/\ell$ である(表-3.2参照)から、地層内の Ca 、 Mg が浸透水によって溶離されること、その濃度が浸透水の浸透前面で特に大きいことがわかる。水中の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度が増加すると、一般に ^{90}Sr 、 ^{60}Co の分配係数値は減少するため(図-3.5A参照)、これらの核種の地層中での移動速度は促進されることになる。

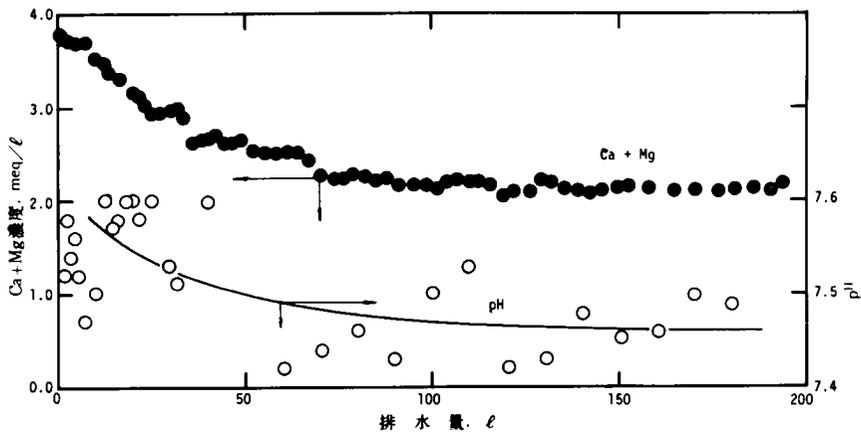


図-3.52 地層流出水の水質変化

(2) 飽和度の変化

実験開始後の地層の飽和度の変化のようすをStation-A(地層表面より深さ8.4cm)について図-3.53に示す。実験開始後約2時間で地層から浸透水が排出し始め、約12時間後にはスプリンクラーの目づまりによって、廃水の供給速度が減少し(この時までの平均供給速度は $8.07\text{ml}/\text{cm}^2 \cdot \text{hr}$)、約14時間後には廃水の供給を停止した。図-3.53をみると、地層の飽和度は給水開始後急速に大きくなり、平衡値に達することがわかる。このことは、給水速度が一定で、かつ給水時間が長い場合に

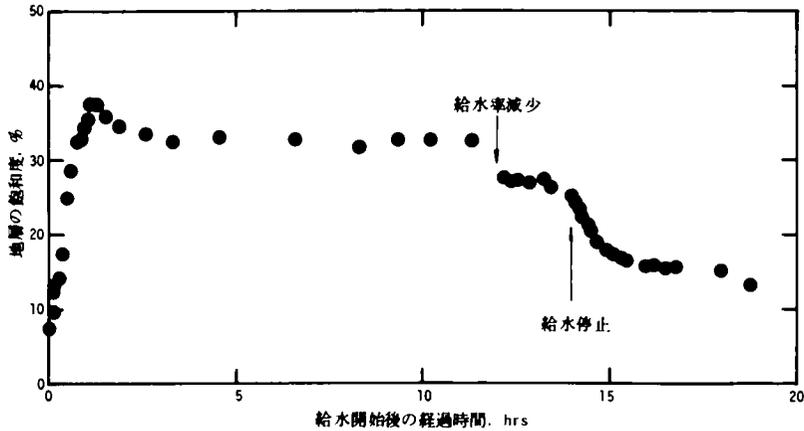


図-3.53 地層の飽和度の経時変化 (Station-A)

は、近似的に、地層の飽和度が給水速度に応じた一定値をとるとみなせることを示している。地層の飽和度は平衡値に到達する前に凸部を呈するが、この凸部の出現時刻と前述のカルシウム・マグネシウム濃度の高い浸透前面の到達時刻とがほぼ等しいことから、この飽和度の変化曲線の凸部は飽和度の特異な変化を表わしているのではなく、 $Ca + Mg$ 濃度の増加による電極間の静電容量の変化を表わしているものと思われる。

地層への給水速度と地層の平衡飽和度との間には一定の関係があると思われる。図-3.54 は実験に使用した給水速度付近での給水速度と平衡飽和度との

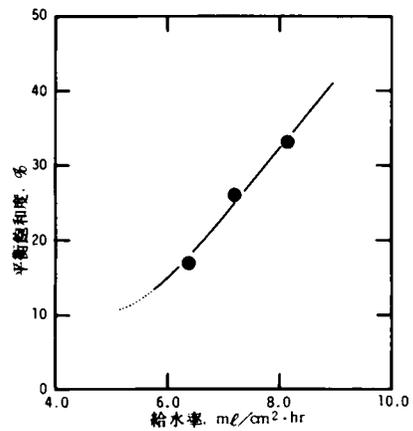


図-3.54 模擬廃液の給水率と地層の平衡飽和度

の関係を図示したものである。給水速度を次第に大きくし、地層表面に湛水するような実験条件を採用すると地層間隙の飽和度はほぼ

90%に達する。実験開始前の地層の飽和度は8% (Station-A) である。給水開始前後および給水中の地層飽和度の深さ方向の変化を図-3.55 に示す。同図より深さが増加するにつれて飽和度も増加することがわかる。

(3) 地層間隙水の拡散特性

地層流出水中の三重水素水濃度の変化を図-3.56 に示す。ここでは三重水素水を水のトレーサー

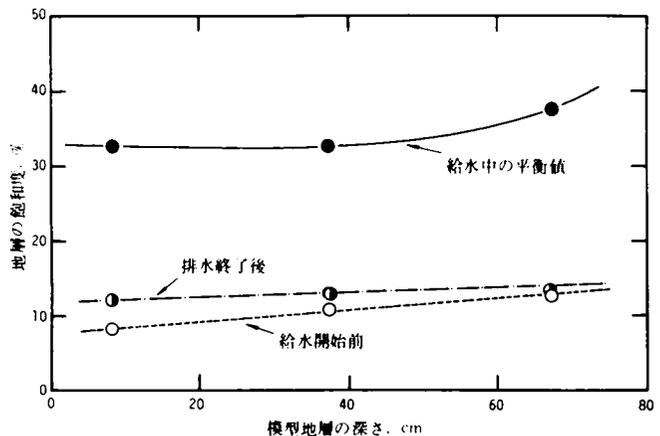


図-3.55 地層の飽和度の深度分布

として用いている。地層からの流出量が0から始まる三重水素水濃度の上昇は地層の飽和度が変化しつつある状態であるのに対し、流出量が100ℓ付近から始まる三重水素水濃度の上昇は

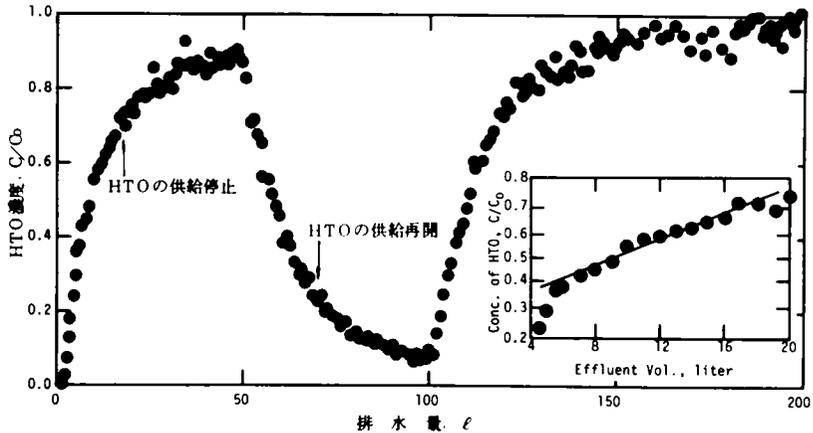


図-3.56 地層流出水中の三重水素水 (HTO) 濃度の経時変化

地層の飽和度が一定の場合である。両者は互いに流出量方向に平行移動することにより重ね合わせることができる。一方、流出量が50ℓ付近から始まる三重水素水濃度の減少は、これを反転し平行移動することによって前述の2つの曲線に重ね合わせることができる。したがって、各々条件の異なる3つの場合の水の拡散係数は実験精度の範囲内においてほぼ等しいことになる。すなわち、①飽和度を変化(増加)させながら、水が浸透していく場合の拡散係数、②①の場合の平衡飽和度のもとで、例えば放射性廃水が非放射性的雨水等で洗浄される場合の拡散係数、③逆に非放射性的雨水等の内へ放射性廃水が浸透する場合の拡散係数は各々ほぼ等しいと考えることができる。

拡散係数および流速が一定とみなせる場合の1次元輸送拡散方程式の解は次式で与えられる。

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \left\{ 1 - \operatorname{erf} \left(\frac{L - vt}{2\sqrt{Dt}} \right) \right\} \quad \dots\dots\dots (3-14)$$

- ここに、 C : 地層流出水中の三重水素水濃度
- C_0 : 地層流入水中の三重水素水濃度
- L : 地層の長さ
- v : 浸透水の流速 (間隙平均流速)
- D : 拡散係数
- t : 時間
- erf : 誤差関数

式(3-14)を対数正規確率紙上にプロットすると $C/C_0 = 0.5$ 、 $t = L/v$ を通る直線となる。したがって、浸透水の間隙流速および拡散係数を一定、かつ地層内で生じる拡散現象は1次元的であるとみなして図-3.56を確率紙にプロット(同図捜図)すれば、得られる直線の勾配から、水の拡散係数値を得ることができる。このようにして求めた濃度勾配を起動力とする拡散係数は $D = 1.5 \times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 、また拡散係数が流速に比例する ($D = D_m v$)^{(51),(52)}として求めた標準拡散係数 D_m は $D_m = 9.2 \times 10^{-1} \text{ cm}$ となる。ただし、浸透水の流速 v として、廃液の供給速度 ($8.07 \text{ ml}/\text{cm}^2 \cdot \text{hr}$)を地層の空隙率 (0.417) および飽和度 (0.325) で除した値 $1.65 \times 10^{-2} \text{ cm}/\text{sec}$ を用いた。

(4) 土壌水分の移動特性値

① 土壌水分拡散係数 $D(\theta)$

図-3.51の実験装置によって測定した土壌水分 θ の移動距離 x による変化の様子を図-3.57に

示す。図-3.57より式(3-12)を用いて算出した土壌水分拡散係数 $D(\theta)$ を図-3.58に示す。 $D(\theta)$ の θ による変化は、同図より、片対数紙上で直線近似できることがわかる。

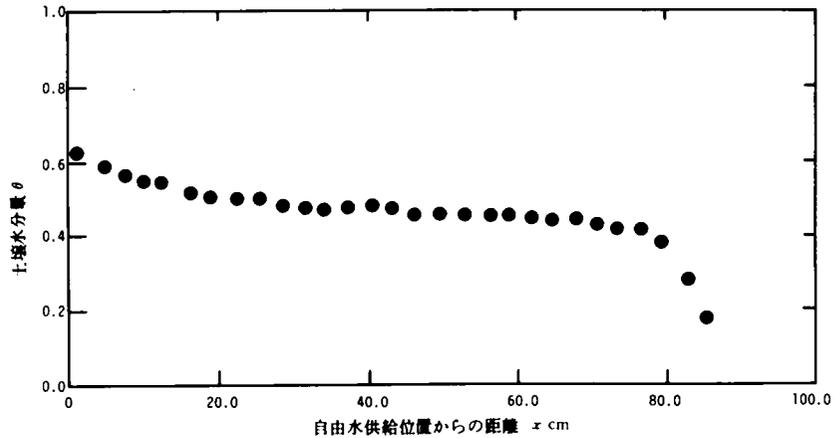


図-3.57 土壌水分の分布曲線

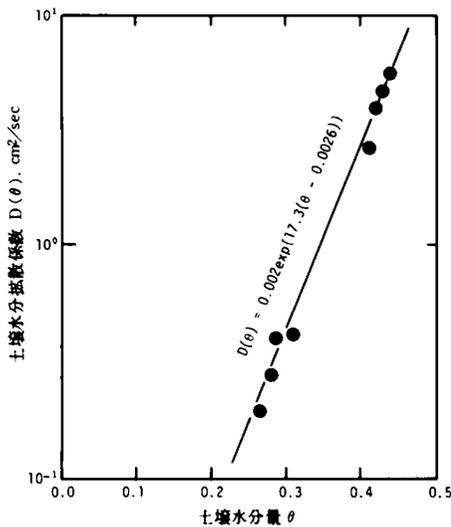


図-3.58 土壌水分拡散係数

この近似式は、

$$D(\theta) = 7.2 \exp\{17.3(\theta - 0.0026)\} \quad \dots\dots\dots (3-15)$$

となる。

ただし、 $D(\theta)$ の単位は cm^2/hr である。

② 不飽和透水係数 $\lambda(\theta)$

土柱法によって測定した毛管ポテンシャル ψ と土壌水分量 θ との関係を図-3.59に示す。同図より、式(3-13)を用いて不飽和透水係数 $\lambda(\theta)$ を算出した。本研究では $\lambda(\theta)$ の実験式として次式を用いる。

$$\lambda(\theta) = \begin{cases} 0 & \dots\dots\dots \theta < 0.1 \\ 0.02 \exp\{20.4(\theta - 0.0026)\} & \dots\dots\dots 0.1 \leq \theta \leq 0.3 \\ 1.08 \exp\{7.0(\theta - 0.0026)\} & \dots\dots\dots 0.3 < \theta \end{cases} \quad \dots\dots\dots (3-16)$$

$\lambda(\theta)$ の単位は cm/hr である。

3.6.3 模型地層内での核種の移動

(1) ^{90}Y の地層模型からの流出

地層流出水中には γ 線放射能、したがって ^{60}Co は検出されず、検出された β 線放射能も2週間後には計数されなくなった。このことから、地層流出水中に存在した核種が ^{90}Sr の娘核種である ^{90}Y であることがわかる。 ^{90}Y の地層流出水中濃度の経時変化を図-3.60に示す。 ^{90}Sr 、 ^{60}Co は模型地層の流出端にまで達しておらず、地層内に保持されているものと思われる。このことは、 ^{90}Y の地層内での移動が ^{90}Sr 、 ^{60}Co の移動に先行することを示している。したがって、 ^{90}Y の地層からの流出が検知されればその後遅れてこれらの核種が流出することになる。放射性核種の通気層での移動をモニターする場合には、 ^{90}Y のこの性質を有効に利用できる可能性がある。 ^{90}Y は水のトレーサーとして用いた三重

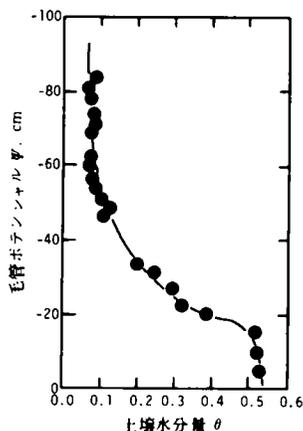


図-3.59 毛管ポテンシャルの土壌水分量との相関

水素水とはほぼ同じ速度で地層を移動する(図-3.56参照)。

(2) ^{90}Sr の地層内分布

地層内の各位置における土壌中の ^{90}Sr 濃度から推定した ^{90}Sr の地層内断面分布を図-3.61に示す。地層内

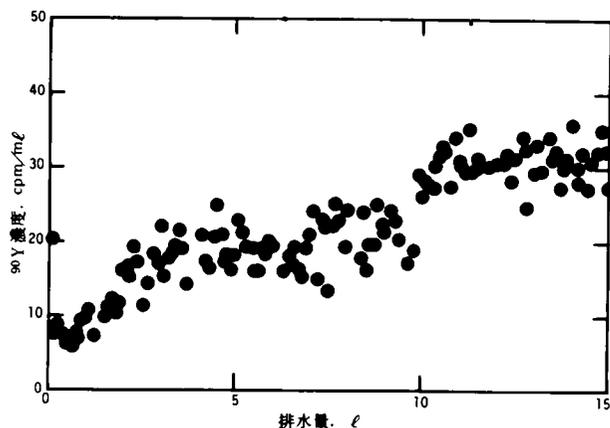


図-3.60 地層流出水中の ^{90}Y 濃度の経時変化

における ^{90}Sr の分布は地層の中心軸に関してほぼ軸対称であり、中心軸に近いほど濃度が大きくなっている。これは、地層模型および地層への廃液の供給が軸対称であること、および中心軸に近い程廃液の供給量が多いこと(図-3.49参照)を反映したものである。

廃液の浸透速度が地層間隙の断面平均値 59.3 cm/hr にほぼ等しいと思われる位置、すなわち、地層の中心軸から半径方向に 10 cm 離れた位置での ^{90}Sr の深さ方向の変化を図-3.62に示す。ただし、同図では土壌中の ^{90}Sr 濃度の実測値 q は、廃液中濃度 C_0 に平衡な土壌中濃度 q_0 で無次元化してある。土壌中の平衡濃度 q_0 は次のようにして推

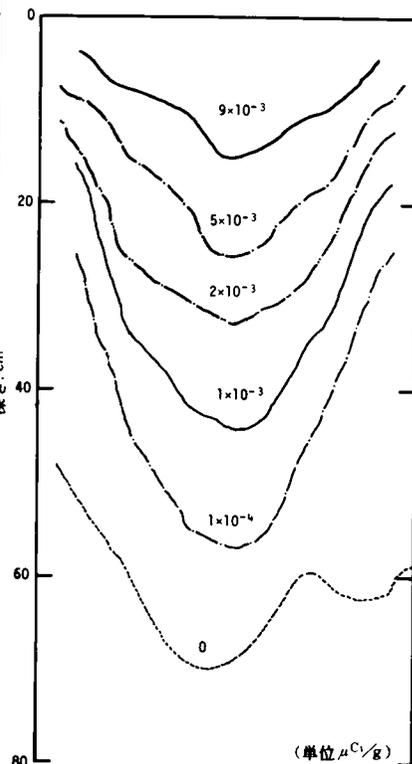


図-3.61 ^{90}Sr の地層内縦断面分布

定した。試料砂を充填した硬質ガラス製カラムに⁹⁰Srのみを含む模擬廃水を通水することによって得た⁹⁰Sr

表 - 3.21 分配係数値とその測定条件

| 核種 | 土壌カラム | | | カラム流入液 | | | | 分配係数 ml/g |
|------------------|----------|---------|----------|--------------|-----|----------------------|---------------------------------|--------------|
| | 高さ mm | 重量 g | 空隙率 % | 総硬度 meq/l | pH | 核種濃度 μCi/ml | 通水速度 ml/cm ² ·min | |
| ⁶⁰ Co | 150 | 90.0 | 40.0 | 1.54 | 7.3 | 3.0×10 ⁻³ | 2.84 | 25.6 |
| ⁹⁰ Sr | 154 | 84.6 | 45.9 | 1.68 | 7.1 | 7.5×10 ⁻⁴ | 2.74 | 4.4 |

の分配係数値 kd は $Ca + Mg$ 濃度が 1.68 meq/l のとき 4.4 ml/g である (表 - 3.21 参照)。カラム法によって測定した kd の $Ca + Mg$ 濃度による変化パターンが、バッチ法によって測定した kd の $Ca + Mg$ 濃度による変化パターンと相似であるとみなして、図 - 3.5 (A) を用いて、上記の kd 値 4.4 ml/g を、通気層へ供給する廃液中の $Ca + Mg$ 濃度 1.53 ml/l の場合に補正する。補正された kd 値は 4.8 ml/g である。分配係数値の定義より

$$q_0 = kd C_0$$

であり、通気層へ供給する模擬廃液中の ⁹⁰Sr 濃度 C_0 は $2.2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ である (表 - 3.18 参照) から、模擬廃液中濃度に平衡な ⁹⁰Sr の土壌中濃度 q_0 は $1.1 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/g}$ となる。

(3) ⁶⁰Co の地層

内分布
地層に供給された ⁶⁰Co の大部分は地層の表面近く、深さ 5 cm までの間に交換吸着されており、その深さ方向の分布は ⁹⁰Sr のように広がってはいない。地層の中心軸から半径方向に 10 cm 離れた位置での ⁶⁰Co の深さ方向の分布を図 - 3.62 に示す。

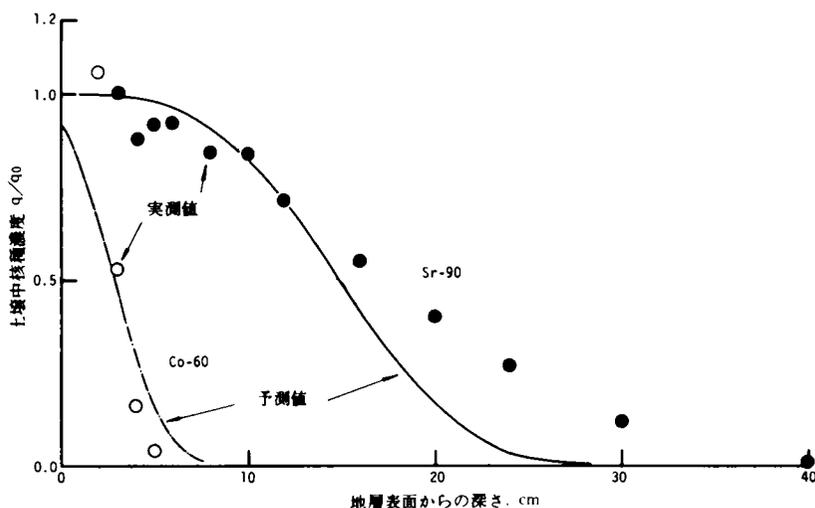


図 - 3.62 ⁹⁰Sr, ⁶⁰Co の地層内濃度分布、実測値と予測値 (井上の拡張理論) の比較

⁶⁰Co の土壌中平衡濃度 q_0 は、⁶⁰Co の分配係数値が $Ca + Mg$ 濃度が 1.54 meq/l のとき 25.6 ml/g である (表 - 3.21 参照) こと、および $C_0 = 1.6 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ である (表 - 3.18 参照) ことから、 $q_0 = 4.0 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/g}$ となる。分配係数値を測定したカラム実験条件である $Ca + Mg$ 濃度 1.54 meq/l は、通気層へ供給される模擬廃液の $Ca + Mg$ 濃度 1.53 meq/l とほぼ等しいため、⁶⁰Co の分配係数値を $Ca + Mg$ 濃度について補正する必要はない。

⁶⁰Co は ⁹⁰Sr に比べると土壌により強く交換吸着されるため、地層中を ⁹⁰Sr ほどは深くまで移動しないことが解る。これらの核種の移動深さの大小は分配係数値の大小と一致している。

3.6.4 核種の地層内分布の予測

(1) 井上の拡張理論による方法

地層の飽和度 S (従って土壤水分含有量 θ) が一定であるとみなせる場合に、帯水層における放射性核種の移動に類似して、模型通気層における核種の移動が次の一次元輸送拡散方程式、

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(C + \frac{1-f}{fS} \rho q \right) = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial C}{\partial x} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (vC) \quad \dots\dots\dots (3-17)$$

で記述できるものとする。核種の土壤中濃度 q と水中濃度 C の間には式(2-56)で示される関係が成立するとして、上式(3-17)を

$$\begin{aligned} \text{初期条件} \quad t = 0 & : q = 0 \\ \text{境界条件} \quad x = 0 & : q = q_0 \end{aligned}$$

なる条件の下に解くと、核種の地層内分布を表わす解、式(3-18)を得る。

$$\frac{q}{q_0} = \frac{1}{2} \left[1 - \operatorname{erf} \left\{ \frac{x - vT/K_{f,u}}{2\sqrt{D_m v T/K_{f,u}}} \right\} \right] \quad \dots\dots\dots (3-18)$$

ここに、 x は模型通気層の表面から鉛直方向に測った距離、 T は実験継続時間である。また $K_{f,u}$ は式(2-46)、すなわち、

$$K_{f,u} = 1 + \frac{1-f}{fS} \rho kd$$

で定義される通気層における K_f 値である。本実験では、地層が軸対称であること、拡散係数、地層の飽和度が実験開始初期を除けばほぼ一定であるとみなせることから、模擬廃液の浸透速度が地層断面平均速度に等しいと考えられる位置(地層の中心軸から半径方向に約 10 cm 離れた位置)においては、式(3-18)を用いて、核種の地層内分布を推定することができると思われる。

通気層模型を用いた実験条件は、地層の空隙率 $f = 0.417$ 、飽和度 $S = 0.325$ 、土壤の密度 $\rho = 2.67 \text{ g/cm}^3$ 、分配係数値は $kd(^{60}\text{Co}) = 25.6 \text{ ml/g}$ 、 $kd(^{90}\text{Sr}) = 4.8 \text{ ml/g}$ であるから、 $K_{f,u}(^{60}\text{Co}) = 297$ 、 $K_{f,u}(^{90}\text{Sr}) = 56$ となる。一方、模型通気層の長さは $L = 138 \text{ cm}$ 、模擬廃液の地層断面平均浸透速度は $v = 59.6 \text{ cm/hr}$ 、標準拡散係数 $D_m = 0.92 \text{ cm}$ 、実験継続時間 $T = 14 \text{ hrs}$ であるから、式(3-18)は各々、

^{60}Co について

$$\frac{q}{q_0} = \frac{1}{2} \left\{ 1 - \operatorname{erf} \left(\frac{x - 2.80}{3.21} \right) \right\} \quad \dots\dots\dots (3-19)$$

^{90}Sr について

$$\frac{q}{q_0} = \frac{1}{2} \left\{ 1 - \operatorname{erf} \left(\frac{x - 14.84}{7.39} \right) \right\} \quad \dots\dots\dots (3-20)$$

となる。式(3-19)、式(3-20)を計算して図-3.62に示す。

(2) 数値解による方法

第2章で述べたように通気層中での放射性核種の移動をより厳密に予測するためには、土壤水分の

移動を記述する基礎式と核種の移動を記述する基礎式とを連立して解く必要がある。第2章5節で得た基礎式を円柱座標系に変換すると次式を得る。

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ D(\theta) r \frac{\partial \theta}{\partial r} \right\} + \frac{\partial}{\partial z} \left\{ D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial z} \right\} - \frac{d\lambda}{d\theta} \frac{\partial \theta}{\partial z} \quad \dots\dots\dots (3-21)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\theta + \rho k d_u) C = & \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \theta C D(\theta) r \frac{\partial \theta}{\partial r} \right\} \\ & + \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \theta C D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial z} \right\} - \frac{\partial}{\partial z} (\theta C \lambda) \quad \dots\dots\dots (3-22) \end{aligned}$$

$$\text{ここに, } k d_u = k d / S = f k d / \{ (1-f) \theta \} \quad \dots\dots\dots (3-23)$$

式(3-21), (3-22), (3-23)はそれぞれ式(2-50), (2-55), (3-5)に対応している。式(2-55)から式(3-22)を得る過程で2つの近似を採用している。その1は核種の自己崩壊項を無視していることである。本節および次節における実験の継続時間は放射性核種の半減期に比べて十分に短いから、この近似は妥当である。その2は濃度勾配を起動力とする拡散項を無視していることである。実験条件下における土壌水分の移動は毛管流としての移動が卓越していると考えられる。毛管流においては、隣りあう2つの毛管水滴は土壌粒子の表面に形成される薄い水膜によって連絡されている。それ故、この水膜を通して生じる放射性核種の濃度差による拡散は、毛管水滴どうしがぶつかりあうことによって生じる核種の混合(水分拡散係数 $D(\theta)$ で評価される)に比べて、十分に小さいと考えられる。また、ここでは実験的に得られた式(3-5)を低い土壌水分範囲にまで外推し、式(3-23)を用いることにする。

① 数値解法

通気層模型を深さ(z)方向、半径(r)方向に等間隔(a)の格子網で覆い、基礎式(3-21), (3-22)をCrank-Nicolson型の差分で近似する。得られた差分近似式の解を逐次過緩和法(S, O, R)で数値的に得る。時間のきざみ幅を $\Delta t = h$ 、時刻 $t (= n \cdot \Delta t)$ 、位置 $(i, j) = (i \Delta r, j \Delta z)$ における土壌水分量を $\theta_{i,j}^n$ 、放射性核種濃度を $C_{i,j}^n$ とすれば、基礎式の差分近似式は次のように与えられる。土壌水分の移動を記述する基礎式(3-21)の差分近似式は次のとおりである。

$$\begin{aligned} \theta_{i,j}^{n+1} &= \theta_{i,j}^{n+1} + \omega E_{i,j} \\ E_{i,j} &= \frac{1}{A} \{ B \theta_{i+1,j}^{n+1} + C \theta_{i-1,j}^{n+1} + D \theta_{i,j+1}^{n+1} + E \theta_{i,j-1}^{n+1} \\ &+ A A \theta_{i,j}^n + B B \theta_{i+1,j}^n + C C \theta_{i-1,j}^n + D D \theta_{i,j+1}^n + E E \theta_{i,j-1}^n \} - \theta_{i,j}^{n+1} \end{aligned}$$

ここに、

$$\begin{aligned} A &= 1 + \frac{h}{2a^2} \left(1 + \frac{1}{2i} \right) D_{i+\frac{1}{2},j}^{n+1} + \frac{h}{2a^2} \left(1 - \frac{1}{2i} \right) D_{i-\frac{1}{2},j}^{n+1} \\ &+ \frac{h}{2a^2} D_{i,j+\frac{1}{2}}^{n+1} + \frac{h}{2a^2} D_{i,j-\frac{1}{2}}^{n+1} + \frac{h}{2a} \left(\frac{d\lambda}{d\theta} \right)_{i,j-\frac{1}{2}}^{n+1} \end{aligned}$$

$$B = \frac{h}{2a^2} \left(1 + \frac{1}{2i}\right) D_{i+\frac{1}{2},j}^{n+1}$$

$$C = \frac{h}{2a^2} \left(1 - \frac{1}{2i}\right) D_{i-\frac{1}{2},j}^{n+1}$$

$$D = \frac{h}{2a^2} D_{i,j+\frac{1}{2}}^{n+1}$$

$$E = \frac{h}{2a^2} D_{i,j-\frac{1}{2}}^{n+1} + \frac{h}{2a} \left(\frac{d\lambda}{d\theta}\right)_{i,j-\frac{1}{2}}^{n+1}$$

ω は緩和係数、 $E_{i,j}$ は逐次近似計算の誤差補正量、また係数 $AA \sim EE$ は、それぞれ時刻 $t (= n\Delta t)$ における係数 $A \sim E$ と同じである。

一方、式(3-22)の差分近似式は次のようになる。

$$C_{i,j}^{n+1} = C_{i,j}^{n+1} + \omega E_{i,j}$$

$$E_{i,j} = \frac{1}{F} \{ GC_{i-1,j}^{n+1} + HC_{i,j-1}^{n+1} + FFC_{i,j}^n + GGC_{i-1,j}^n + HHC_{i,j-1}^n \} - C_{i,j}^{n+1}$$

$$\text{ここに、 } F = (\theta + \rho k d_u)_{i,j}^{n+\frac{1}{2}} + \frac{h}{2a} \left(1 + \frac{1}{2i}\right) (\theta D \frac{\partial \theta}{\partial r})_{i+\frac{1}{2},j}^{n+1} \\ - \frac{h}{2a} (\theta D \frac{\partial \theta}{\partial z})_{i,j-\frac{1}{2}}^{n+1} + \frac{h}{2a} (\theta \lambda)_{i,j-\frac{1}{2}}^{n+1}$$

$$G = \frac{h}{2a} \left(1 + \frac{1}{2i}\right) (\theta D \frac{\partial \theta}{\partial r})_{i+\frac{1}{2},j}^{n+1}$$

$$H = - \frac{h}{2a} (\theta D \frac{\partial \theta}{\partial z})_{i,j-\frac{1}{2}}^{n+1} + \frac{h}{2a} (\theta \lambda)_{i,j-\frac{1}{2}}^{n+1}$$

係数 $FF \sim HH$ は $F \sim H$ において $(n+1) \rightarrow (n)$ としたものである。

この他、土壌水分量 θ から地層間隙の水による飽和度を計算するのに式(2-54)を、また土壌水分中核種濃度を土壌中核種濃度に変換するには式(2-56)を用いた。

② 初期条件

土壌水分の初期条件は、模型地層全体一様に $\theta = 0.07$ を用いた。これは実験開始時の土壌水分であり、飽和度に換算すると $S = 0.10$ である。一方、放射性核種濃度の初期条件は全層一様に $C = 0$ とした。

③ 境界条件

土壌水分および核種濃度の分布とも、以下の境界条件を使用した。まず、地層表面では実験終了時に測定した実測分布を用いた。地層底面では濃度勾配が線型、地層模型の側壁では濃度勾配がゼロ、また中心対称軸では濃度勾配がゼロかつ深さ方向に一次元化した基礎式が成立するとの条件を採用し

た。

計算に用いたフロー・チャートを図-3.63に示す。

④ 計算結果

実験終了時(実験開始後14時間)の地層内⁹⁰Sr濃度分布の推定結果を図-3.64に示す。同図中の破線は実測濃度分布である。数値計算の実行時に用いた計算条件は次の通りである。時間ステップ幅 h は0.002hr, 空間ステップ幅 a は2.5cm, 地層の空隙率は41.7%, 土壤の密度は2.67g/cm³, また⁹⁰Srの土壤と土壤水分との間の飽和分配係数値 kd は4.8ml/gである。地層の水分分散係数 $D(\theta)$, 不飽和溶水係数 $\lambda(\theta)$ はおのこの式(3-15), 式(3-16)を用いた。

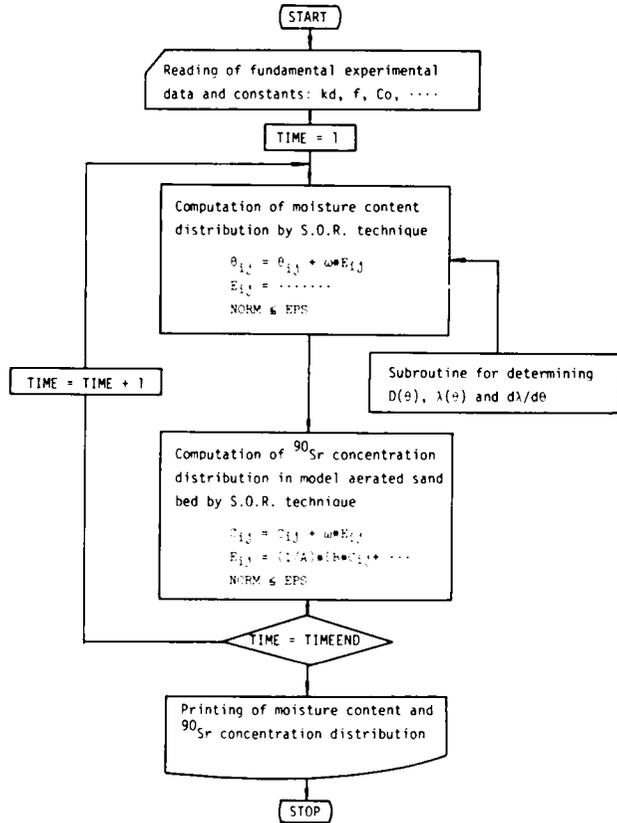


図-3.63 ⁹⁰Sr濃度を決定するためのフローチャート

3.6.5 考 察

井上の拡張理論によって、地層内の核種分布を推定するために、地層流出水中のHTO濃度変化(図-3.56参照)に式(3-14)を適用して拡散係数 D を算出した。式(3-14)は土壤間隙が水で飽和されている地層内での核種の移動を記述する一次元輸送拡散方程式の解である。それ故、式(3-14)に含まれる拡散係数 D は、形式的には濃度勾配を起動力とする拡散係数ということになる。しかしながら、すでに述べたように実験条件下の地層内での土壤水分の移動機構は主として毛管流であると考えられる。それ故、拡散係数 D は毛管水滴の混合による核種の拡散効果(土壤水分分散係数 $D(\theta)$ で表わされる)をも併せて示すみかけの拡散係数であると考えるのが妥当であろう。このみかけの拡散係数は、地層の飽和度が増加する場合と飽和度が一定の場合とではほぼ等しく、標準拡散係数 D_m は0.92cmであった。

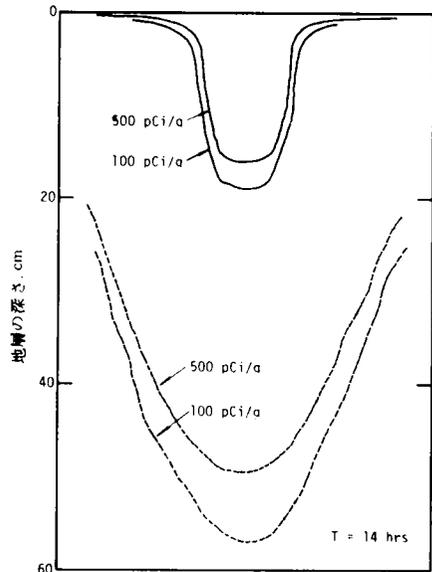


図-3.64 ⁹⁰Srの地層内分布、予測分布(実線)と実測分布(破線)との比較

井上の拡張理論によれば、地層の飽和度が一定であれば時間変換係数の考え方によって、通気層中の核種の移動速度を近似的に評価することができる。安全側（核種の移動速度を速く評価する側）の仮定を採用することにして、通気層および帯水層における ^{90}Sr の分配係数値が等しいとすれば、本節の実験条件下で通気層の K_{fu} 値は56になる。一方、前節の実験によれば、帯水層における ^{90}Sr の K_f 値は実験初期で24、実験後期ではほぼ50である。 K_f 値は核種が一定距離を移動するのに要する時間が地下水の移動所要時間の何倍に相当するかを示す。2つの K_f 値を比べると通気層が放射性核種の移動を遅滞させる能力は帯水層のそれに比べて大きいであろうことが伺える。本節の実験では ^{60}Co の K_{fu} 値は約300である。 ^{90}Sr の移動深さは地層の中心軸付近で最も深く約70cmである（図-3.61参照）。地層への模擬廃液の供給速度を降雨強度に換算すると74.2mm/hrになる。つまり、本節の実験では74.2mm/hrの（ ^{90}Sr と ^{60}Co を含む）降雨が14hr継続したことになり、総降雨量は約1,040mmに相当する。降雨量が比較的大きいにもかかわらず、放射性核種の移動深さが小さいことから、放射性核種を交換吸着してその移動速度を低減させるのに果す通気層の役割が大きいことが伺える。

図-3.62をみると、 ^{90}Sr の実測濃度分布と井上の拡張理論による予測濃度分布とは、特に模型通気層の深部で一致していないことがわかる。予測濃度分布は ^{90}Sr の地層内での実移動を過小評価していることに注意する必要がある。この予測誤差は、地層中を移動した ^{90}Sr によって人が受けるであろう内部被曝線量を実際よりも小さく評価する危険側の誤差である。この予測誤差は、予測濃度分布が14hrの廃液供給終了後、地層内間隙水が重力排水される期間の核種の移動および重力排水終了後の土壤水分の再配分に伴う核種の移動を考慮していないことに起因すると思われる。したがって、これらの影響を正しく評価することによって予測誤差はさらに小さくなるものと考えられる。それ故、通気層における放射性核種の移動速度を予測し、放射性廃液の漏出によって人が受けると考えられる被曝線量を近似的に推定する場合には、井上の拡張理論を用いることができよう。大量の廃液が長時間にわたって地表面近くに漏出するような場合には、地層間隙の水による飽和度は1に近くなるから、井上の拡張理論によって核種の移動を予測することの妥当性・近似精度はより大きくなる。

図-3.63のフロー・チャートにしたがって推定した ^{90}Sr の地層内濃度分布が図-3.64である。数値解法による予測濃度分布は実測濃度分布と一致していない。しかも、予測分布は、実際の ^{90}Sr の移動深さを過小評価する側の誤差を生じている。後で示す図-3.64と図-3.65とを比較してみれば（数値解法によって得られる予測濃度分布とを比較すると）いずれもこの種類の予測誤差を生じていることがわかる。この誤差の原因については次節で詳しく検討する。

通気層内での放射性核種の移動を予測する方法は大きく2つに区分することができる。それらは、核種の分配係数値が通気層と帯水層とでは異なるとして、反応式として $q = kd_u C$ を用いる方法と、両者が等しい（ $kd_u = kd_s$ ）として $q = kd_s C$ を用いる方法とである。さらに、これらの方法は、それぞれ土壤水分 θ の分布がすでに定常状態にあると見なすか否かによって近似法と厳密法とに区分することができる。第2章で紹介した井上の拡張理論は反応式として $q = kd_s C$ を用い、土壤水分の分布が一様かつ定常であるとする方法である。ここでは $q = kd_s C$ 、 θ ：Non-steadyの場合を除く3つの予測方法について、実験開始14時間後（実験終了時）の ^{90}Sr 濃度分布を予測して、その結果を図-3.65に示した。土壤水分の分布が実験開始時にすでに定常・平衡状態にあると仮定すると、

仮定しない場合に比べて、また分配係数値として kd_s を用いる場合には kd_u を用いる場合に比べて ^{90}Sr の移動深さが大きくなることわかる。図中、 $q = kd_u \cdot C$ 、 θ : Steady の予測例は井上の拡張理論による予測に相当する (表-2.2 参照)。

3.6.6 ま と め

本節の検討によって得られた結論を整理するとつきようになる。

(1) 模擬廃液が地層を構成する土砂と接触すると、浸透水中の $C_a + M_g$ 濃度が增加する。この $C_a + M_g$ 濃度の増加は浸透水の浸透前面で著しい。濃度増加は廃液の浸透量が増加するにつれて漸減するが、長期間継続すると思われる。地層流出水中の $C_a + M_g$ 濃度は、 ^{90}Sr 、 ^{60}Co 濃度の検出に先がけて増加する。

(2) 地層の飽和度は給水開始後、比較的早く給水速度に対応する平衡値に到達する。したがって、給水速度が一定で給水継続時間が長い場合には、地層の飽和度はほぼ一定であるとみなすことができよう。地層の飽和度は、実験条件下で、深さが増すにつれてやや増加する傾向を有する。

(3) 地層内での水のみかけの拡散係数 D は、飽和度が増加する場合と一定の場合とではほぼ等しい。この拡散係数は標準拡散係 D_m で表すと 0.92 cm であった。

(4) ^{90}Sr の娘核種である ^{90}Y の地層内での移動速度は速く、浸透水とはほぼ同速度であると思われる。 ^{90}Y をモニターすることにより ^{90}Sr 、 ^{60}Co の移動を予知することができよう。

(5) 通気層が放射性核種を保持し、その移動速度を低減させる効果は大きい。

(6) 地層が比較的均質な場合には、通気層内での核種の移動速度を近似的に評価し、さらに人が受けるであろう被曝線量を近似的に推定するために、井上の拡張理論を適用することができる。同理論適用の近似精度は、大量の廃液が比較的長時間広範囲に漏出する場合のように、地層の飽和度が1に近くなる条件が満たされる場合ほど良好であると思われる。

(7) 基礎式を数値的に解くことによって、核種の地層内濃度分布を推定する場合に、土壤水分の分布が最初から定常・平衡状態にあると仮定すると、仮定しない場合に比べて、また分配係数値として kd_s を用いると kd_u を用いる場合に比べて、 ^{90}Sr の移動深さの推定値は大きくなる。

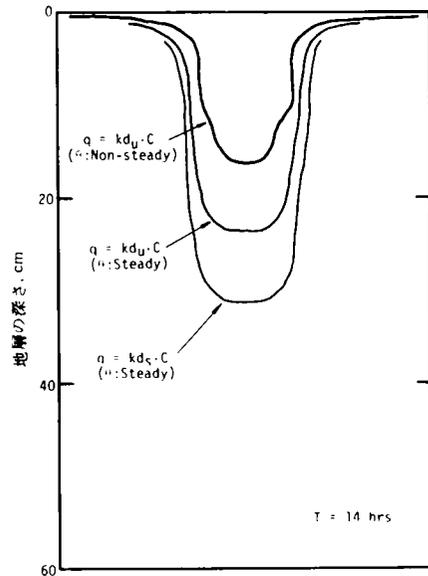


図-3.65 ^{90}Sr の地層内予測濃度分布の比較 (^{90}Sr 500 pCi/g の等濃度線で比較)

3.7 通気層模型における放射性核種の移動

—— セメント固化体中に放射性核種が含まれる場合 ——

前節では、何らかの事故あるいは浸透処分の実施等によって通気層へ放射性廃液が漏出する場合を想定し、廃液中に含まれる放射性核種がどのように通気層中を移動するかについて検討した。本節では、放射性廃棄物をセメント固化して地中 (主として通気層が用いられる) に処分する場合を想定し、

セメント固化体から浸出した核種が模型通気層中をどのように移動するかについて検討する。

前節の実験で用いた通気層模型を、地層に供給する雨水（水道水）の分布が時間的・場所的に一樣になるように改良した。実験対象核種としては廃棄物をセメント固化して地中処分する場合に、処分場周辺住民の放射線学的安全性を支配すると考えられる核種である ^{90}Sr (21) に注目した。セメント固化体中に含まれる ^{90}Sr が雨水浸透水と接触してどのように地層中へ移行し、通気層を移動するかを実験的に把握するとともに、前節に続き、第2章で提案した通気層における核種移動を記述する理論によって、 ^{90}Sr の移動を予測することの妥当性を検証する。

3.7.1 実験方法

(1) 実験装置の概要

実験に用いた通気層模型実験装置を図-3.66 に示す。装置は肉厚の1cm、直径50cm、高さ30cmの亚克力製フランジ管と、同じく肉厚1cm、直径50cm、高さ10cmで内壁に深さ1cmの排水溝を有する亚克力製フランジ管を任意の段数積み重ねることによって構成される。実験では前者のフランジ管を5段、後者を1段積み重ねた。後者のフランジ管は、模型装置の内壁を伝って移動する水を排除するために用いた。実験装置の上部には金属製のスプレー・ノズルがとりつけられており、このスプレーにゲージ圧約1.5気圧の加圧水を供給することにより、地層表面に時間的・場所的に一樣な霧状雨水を供給することができる。スプレー・ノズル先端と地層表面との間の距離は、スプレーされる水の分布に偏りがなくなるように約40cmとした。前節で用いたスプリンクラーと異なり、本実験では地層表面に供給される水道水は場所的・時間的に一樣である。この水道水は放射性核種を含まない。

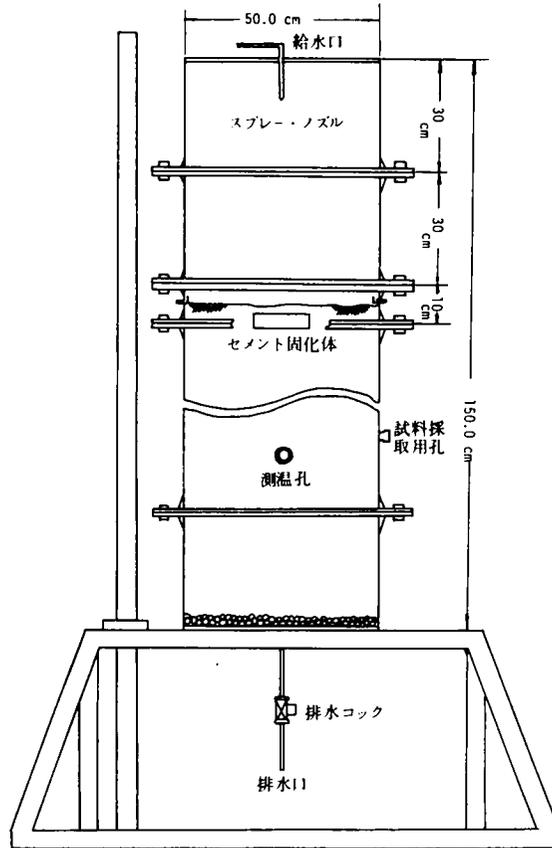


図-3.66 通気層模型実験装置（固化体降雨実験）

がなくなるように約40cmとした。前節で用いたスプリンクラーと異なり、本実験では地層表面に供給される水道水は場所的・時間的に一樣である。この水道水は放射性核種を含まない。

各フランジ管には層内温度測定用の測温抵抗体の捜入口、試料砂の採取口が設けられており、試料砂採取口からは1回当たり0.1～10gの充填砂を採取することができる。

図-3.66の実験装置に日本原子力研究所・東海研究所構内において採取した主として珪砂からなる粗砂（密度2.67g/cm³、有効径0.51mm、均等係数2.0、標準酢酸アンモニウム法による陽イオン交換容量9.44μeq/g）約300kgを高さ94.5cm、平均空隙率42%*となるように充填した。砂層の下

* 原子力研究所構内砂層の空隙率は38%～42%の範囲に分布している。(66)

部には排水を良好にするために砂礫を厚さ 5 cm に敷きつめた。地層底部に地層浸透水が帯水して地下水を形成することはなく、したがって本通気層模型は地下水位が十分に深い場合の現実の地層を模しているといえる。実験開始前の通気層の飽和度は約 8.0 % であった。地層の飽和透水係数は約 $1.2 \times 10^{-1} \text{ cm/sec}$ ($4.3 \times 10^2 \text{ cm/hr}$) である。

地層表面から深さ 2 ~ 6 cm の間に、セメント固化体の中心軸と模型通気層の中心軸とが、一致するようにセメント固化体を埋設した。スプレー・ノズルで地層表面に供給した水道水の総量は 7,950 ℓ、給水継続時間は 793.5 時間、この期間の断面平均給水速度はほぼ一定で $5.1 \text{ ml/cm}^2 \cdot \text{hr}$ である。採用した実験条件下では給水速度に比べて、地層の透水係数が十分に大きいため、地層表面に供給水が湛水することはない。地層内での水分移動は土壌水分の拡散現象に比べ、浸透現象が卓越するものと思われる。また実験条件下では水道水を連続的に給水するため、土壌水分の移動についてヒステリシス現象は生じないものと考えられる。実験に用いた水道水の代表的な水質を表-3.2 に示す。

(2) 模擬セメント固化体の作製

^{90}Sr 5 mCi および三重水素水 (HTO) 5mCi を含む水道水 409ml で、市販の普通ポルトランドセメント 1,022 g を粘りませ、内径 15 cm、高さ 4 cm の鉄製型枠に打設した。7 日間の湿潤養生の後、固化体を型枠からとりはずして実験に使用した。固化体は水・セメント比 0.4、重さ約 1,430 g である。固化体中に封入する核種は、廃棄物地中処分の安全性を検討する場合に決定核種となる例の多い ^{90}Sr と、 ^{90}Sr の固化体からの浸出と地層中での移動を予測する場合に必要な水分移動のトレーサーとして HTO を各々選定した。

(3) 地層流出水中の水質変化

地層流出水を一定時間毎にサンプリングし、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度、HTO 濃度、 ^{90}Y 濃度を測定した。 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度は地層流出水 50 ml を検水として EDTA 法で、HTO 濃度、 ^{90}Sr 濃度は流出水 1 ml を各々試料ビン、アルミ製プランシュットに採取して流体シンチレーションカウンターおよび 2π ガスフローカウンターで計測した。地層流出水の pH 値は地層流出口に設けた排水溜 (容量約 300 ml) 中の値を pH メーターを用いて連続的に測定・記録した。

(4) 地層内飽和度の変化

地層内飽和度の経時変化のパターンについては前節で詳しく検討した。本節では実験継続中に 2 度地層表面から深さ 19 cm、49 cm および 79 cm の位置に設けられた試料採取孔から試料砂を採取し、乾燥器 (110 °C) で乾燥し、乾燥時・湿潤時の重量の差から地層の飽和度を決定した。

(5) 地層内温度の変化

実験中の温度変化を測定するために、測温抵抗体と打点式記録計を使用した。地層内の 4 ケ所、地層外の気温 (室温) 1 ケ所および地層に供給する水道水温 1 ケ所、合計 6 ケ所の温度を各々 30 秒毎に自動的に測定・記録した。

(6) ^{90}Sr の地層内分布

地層への給水停止約 24 時間後に模型地層を分解して、任意の位置から試料砂約 10 g を採取した。乾燥器 (110 °C) で乾燥した後 1 規定の塩酸 50 ml を加えて、 ^{90}Sr を溶離させた後、溶離液中の β 線放射能を 2π ガスフローカウンターで計測し、計算によって ^{90}Sr の地層内濃度を推定した。本方法による ^{90}Sr の溶離率は 94.7 % である。⁽⁶⁾ 地層を構成する土砂の採取位置数は、1 水平断面当り 41 か

所、鉛直方向に地層表面を含む14水平断面、合計 565 ケ所である。

3.7.2 地層の特性

(1) 地層流出水の水質変化

① $Ca + Mg$ 濃度の変化

地層流出水中の $Ca + Mg$ 濃度の変化を図-3.67 に示す。図には参考のために、固化体を用いない前節の実験結果を併せて示す。両者の実験は、放射性物質が地層へ供給される水中に含まれている（前節）か固化体中に含まれている（本節）かという相違の他に、地層に充填した砂の量、水道水の供給方法および供給速度が異なるために、得られた $Ca + Mg$ 濃度値を直接に比較することはできない。しかし、 $Ca + Mg$ 濃度の変化パターンの相違によって、セメント固化体の有無による影響を知ることができる。図-3.67 をみると、地層に供給される水道水中の $Ca + Mg$ 濃度の代表値が 1.53meq/l であるから（表-3

.2 参照），水道水中に含まれている $Ca + Mg$ が地層中を通過する間に固相（砂）から液相（水道水）へ移行していることがわかる。

② pH の変化

地層流出水中の pH の変化を図-3.68 に示す。図には参考のために、固化体を用いない前節の実験結果を併せて示す。本実験の地層流出水の pH 値が流出水の増加と共に増加して平衡値に到達するのに対し、セメント固化体のない前節の実験では、 pH 値は流出初期に一時増加するものの、流出量の増加と共に減少して平衡値に達する

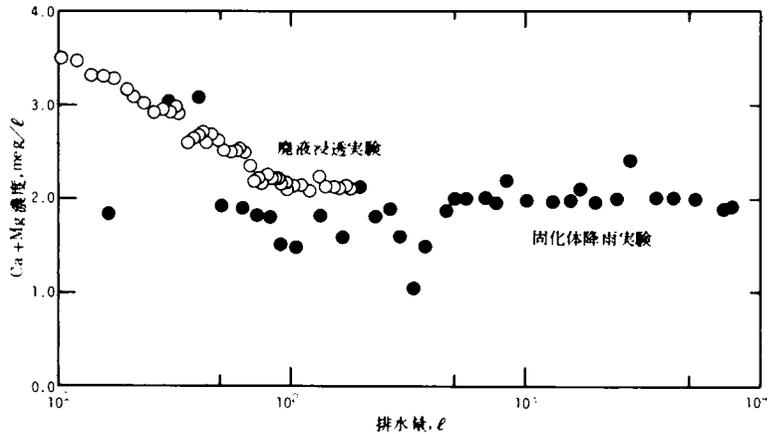


図-3.67 地層流出水中 $Ca + Mg$ 濃度の経時変化

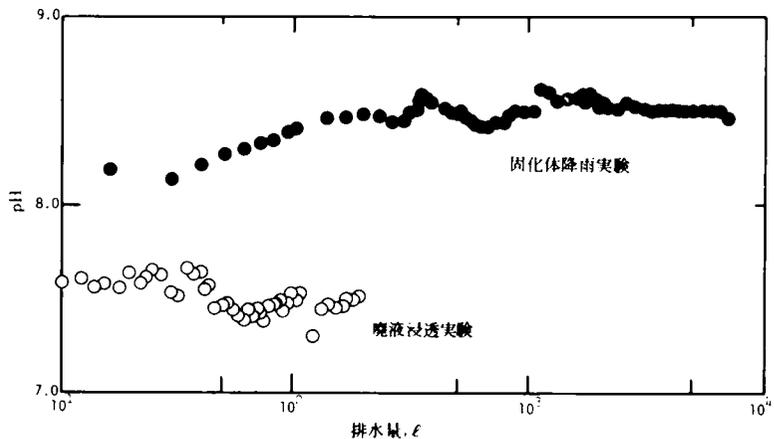


図-3.68 地層流出水中 pH の経時変化

傾向が認められる。地層流出水中の pH 値の増加は明らかにセメント固化体から浸出したアルカリ分の影響である。

(2) 地層内温度・飽和度の変化

実験継続期間中の室温（気温）は $9^{\circ}\text{C}\sim 25^{\circ}\text{C}$ の範囲で、地層に供給する水道水の温度は $13^{\circ}\text{C}\sim 19^{\circ}\text{C}$ の範囲で、また地層内の温度は $12^{\circ}\text{C}\sim 18^{\circ}\text{C}$ の範囲で各々変動した。

一方、地層表面から各々 19cm、49cm、79cm の位置で、実験開始約 7 時間後および 264 時間後に測定した飽和度は測定時刻によらず、各々 26.0%、41.6% であった。このことは、地層の飽和度は地層の深さ程大きくなる傾向があるが、地層表面下約 50cm 以下ではほぼ一定となることを示している。

3.7.3 模型地層内での核種の移動

(1) 三重水素水 (HTO) の地層からの流出

地層流出水中の HTO 濃度の変化を図-3.69 に示す。地層への水道水の給水開始後、地層からの排水開始までに要した時間は約 2.25 時間であった。一方、地層流出水中に HTO が最初に検出されるまでの流出流量は約 30 ℓ （実験開始後約 4.5 時間、排水開始後 2.25 時間）であった。このことは、セメント固化体からの HTO の浸出が極めて早く生じることを示している。

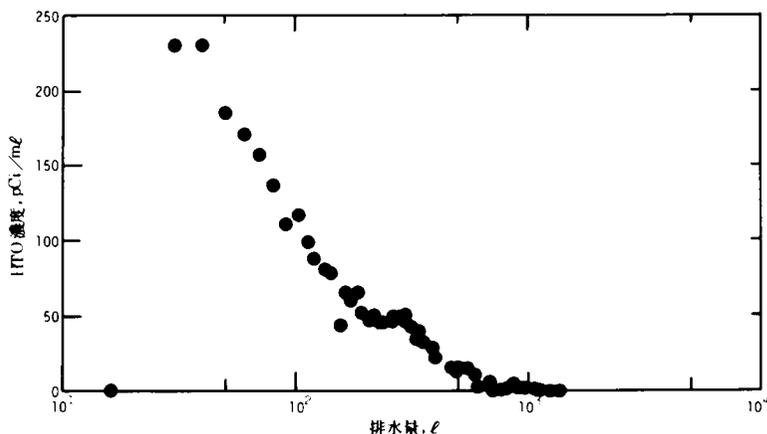


図-3.69 地層流出水中 HTO 濃度の経時変化

図-3.69 をみると、 HTO の濃度は地層内水の排出初期に大きいことがわかる。 HTO 濃度は流出流量が約 1,120 ℓ （実験開始後約 82 時間、排水開始後約 80 時間）の位置ではほぼ測定器の検出限界に等しくなった。これらの現象は、セメント固化体中の遊離水の浸出速度が比較的速く、かつ遊離水が地層への供給水と置換するのに要する時間（セメント固化体間隙水の滞留時間）が比較的短いことを示しているといえる。

(2) ^{90}Y の地層からの溶出

地層流出水中には、 HTO 以外の β 線放出核種は検出されなかった。このことは、 ^{90}Y が地層から流出しなかったか、あるいは流出したとしてもその濃度が極めてうすく、測定器によって検出されなかったかのいずれかであることを意味する。

(3) ^{90}Sr の地層内濃度分布

地層内の各サンプリング位置において測定した土壤中の ^{90}Sr の地層内鉛直断面分布を図-3.70

に示す。地層内での ^{90}Sr の分布は、地層模型の中心軸に関してはほぼ軸対称であり、中心軸に近いほど濃度が大きくなっている。これは地層模型、セメント固化体が軸対称であり、しかも地層への水道水の供給が一樣であること、セメント固化体が地層の中心軸近くに埋設されていること等を反映したものとと思われる。土壌中の ^{90}Sr 濃度は乾燥土砂単位重量当り含まれている放射エネルギー($\mu\text{Ci/g}$)で示した。

土壌中の ^{90}Sr 等濃度線は、地層中心軸付近で最も深くなっている。地層表面に供給された水道水は、障害物(セメント固化体)を迂迴して、一度地層の外周に向かって移動し、障害物を通過した後はその移動の方向を地層の中心軸の方向へ転ずる。すなわち、固化体の下部での土壌水は地層中心軸へ向かう速度成分を有しているといえる。地層中心軸付近に大きな ^{90}Sr の濃度分布は、このように地層内での土壌水分の移動と密接な関係を有しているといえよう。

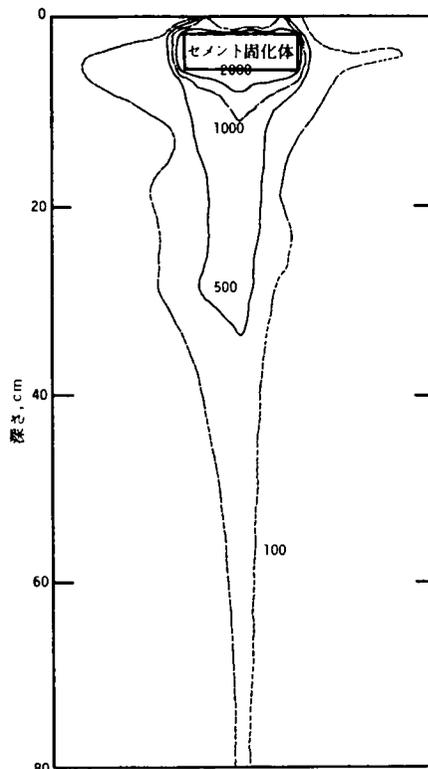


図-3.70 ^{90}Sr の地層内縦断面分布
(^{90}Sr 濃度の単位は $\mu\text{Ci/g}$)

3.7.4 数値解析による地層内 ^{90}Sr 濃度分布の予測

前節と同じく、第2章で述べた理論に基づいて地層内 ^{90}Sr 濃度分布を予測する。本節で実施した実験においては、地層内とりわけセメント固化体周辺での土壌水分移動を直接に把握することができないため、井上の理論によって、 ^{90}Sr 濃度分布を予測することができなかった。数値解析の細目については前節と共通する部分が多いので、本節では主としてその相違点に注目して述べる。用いる記号の意味は全て前節と同じである。

(1) 基礎式と数値解法

通気層模型内での ^{90}Sr の移動を記述する基礎式として、前節と同じく、式(3-21)、式(3-22)を用いる。通気層模型を深さおよび半径方向にそれぞれ等間隔(a)の格子網で覆い、基礎式をCrank-Nicolson型の差分で近似する。得られた差分近似式を逐次過緩和法(S.O.R)で解いてその数値解を得る。2つの基礎式の差分近似式は前節で示した式と同じである。ただし、前節で示した式(3-22)の近似式は、セメント固化体より深い位置の地層について成立する。セメント固化体より上部にある地層については、差分の係数 $F \sim HH$ の書式が少し異なる。何故なら、固化体の上部と下部とでは、土壌水分の水平方向の移動の向きが異なるため、固化体より上部では後進型の差分を、下部では前進型の差分を採用するためである。

(2) 初期条件および境界条件

土壌水分の初期条件は模型地層全体一様に $\theta = 0.07$ を用いた。また ^{90}Sr 濃度については模型地層全体一様に $C = 0.0$ とした。

地層表面の土壤中 ^{90}Sr 濃度が $0.0 \mu\text{Ci}/\text{ml}$ であるとしたこと、およびセメント固化体表面での ^{90}Sr 濃度が以下に述べる方法で与えられたことを除いて、用いた境界条件は前節と全く同じである。セメント固化体表面付近での ^{90}Sr 濃度を次のようにして定めた。本章第5節で述べたように、 ^{90}Sr のセメント固化体からの浸出機構には内部拡散によるものと、固化体自身が溶解するものとの2つがある。本節の実験のようにその継続時間が短い場合には主として内部拡散による浸出現象が卓越する。すなわち、この場合には式(3-8)で表わされるように ^{90}Sr 固化体からの浸出量が時間と共に指数関数的に減少することになる。セメント固化体に接する地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度が、固化体からの ^{90}Sr の浸出量(フラックス)に比例するとすれば、間隙水中の ^{90}Sr 濃度 C は式(3-8)より次式で与えられることになる。すなわち、

$$C = kq \sum_{n=1}^{\infty} \exp\{-(2.17 \times 10^{-6} \beta_n^2 + 1.44 \times 10^{-3})t\}$$

ここに、 β_n : $J_0(\beta) = 0$ の根

q : 固化体表面に接する土壤中の ^{90}Sr 濃度

k : セメント固化体の形状、地層条件等によって定まる定数

t : 浸出時間

となる。計算に際しては実験終了時 ($t = 790 \text{ hrs}$) の実測 ^{90}Sr 濃度を用いて、定数 k を定め、後は上式によって任意の時刻の ^{90}Sr 濃度 C を定めた。計算のフロー・チャートは図-3.63 とほぼ同じであるので、ここでは省略する。

(3) 計算結果

時間ステップ幅 h を 0.1 hr 、空間ステップ幅 a を 2.5 cm として、実験終了時 (790 hrs 後) の土壤中 ^{90}Sr 濃度分布を推定した。推定結果を図-3.71 に示す。すでに述べたように、本節の実験では地層の空隙率は 42.2% 、土壤の密度は 2.67 ml/g 、また、ガラスカラムを用いて測定した ^{90}Sr の土壤と土壤水分との間の分配係数は 10.8 ml/g であった。地層内での土壤水分の分散係数は式(3-15)を用い、不飽和透水係数は式(3-16)の代わりに、次式で定まる値を用いた。

$$\lambda(\theta) = \begin{cases} 0 & \dots\dots\dots \theta < 0.1 \\ 0.02 \exp\{25.60(\theta - 0.0026)\} & \dots\dots\dots 0.1 \leq \theta \leq 0.3 \\ 1.08 \exp\{12.19(\theta - 0.0026)\} & \dots\dots\dots 0.3 < \theta \end{cases}$$

\dots\dots\dots (3-24)

不飽和透水係数 $\lambda(\theta)$ を定める式(3-16)、式(3-24)は、式の形は同じであるが、係数値が一部異なっている。前節で述べた $D(\theta)$ および $\lambda(\theta)$ を定める方法

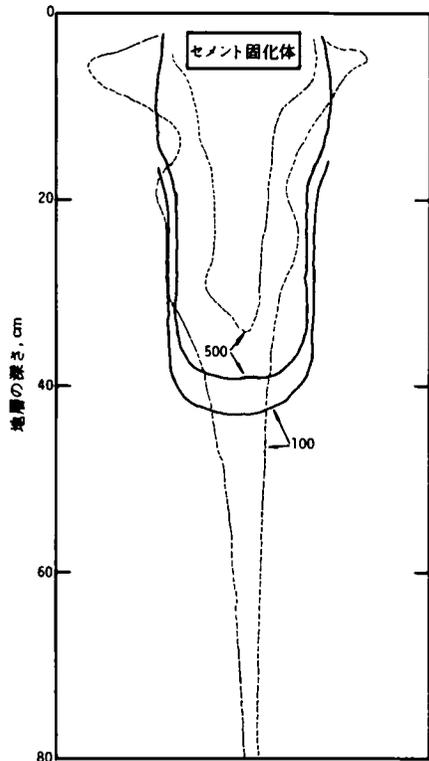


図-3.71 ^{90}Sr の地層内分布、予測分布(実線)と実測分布(破線)との比較 (^{90}Sr 濃度の単位は pCi/g)

では、得られたデータを図解的、直感的に処理する部分があり、それ故得られた $D(\theta)$ 、 $\lambda(\theta)$ の実験式はある程度幅を持つことになる。式(3-16)、式(3-24)の相違は、この幅から考えて有意な相違ではない。

3.7.5 考察

地層流出水中の $Ca + Mg$ 濃度、 pH および HTO 濃度の変化を、流出初期の部分について整理して図-3.72に示す。同図より地層流出水中の水質の変化は pH 値が最も速く、ついで $Ca + Mg$ 濃度、 HTO 濃度であることがわかる。地

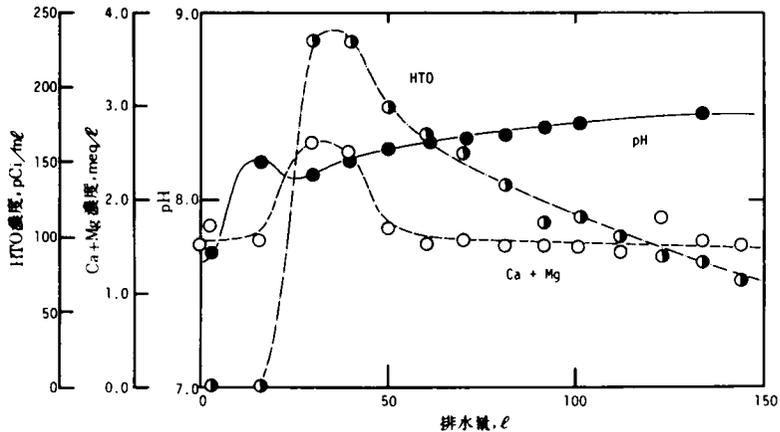


図-3.72 各水質の流出パターンの比較

層流出水の pH 値は流出流量が約 7 ℓ の位置でピークを形成し、一度 pH 値が減少した後再び漸増する。 pH 値の最初のピークは固化体がない場合についても、ほぼ同じ流出流量の位置に出現する（図-3.68 参照）ため、このピークは地層浸透水が地層を構成する土砂と反応することによって生じる pH の増加であることが推定できる。一方、その後の pH 値の漸増は、すでに述べたように、セメント固化体からのアルカリ分の浸出によるものである。 $Ca + Mg$ 濃度の変化が地層流出口において、 pH 値の変化より遅くなる理由は次のようであると推定できる。セメント固化体からアルカリ分と共に浸出した Ca 、 Mg は地層を構成する土壌のもつ陽イオン交換能によって保持された後、地層内を脱着吸着をくり返しながら移動するため、土壌によって吸着されないアルカリ分よりも流出が遅れるのであろう。 HTO は土壌によって吸着されることはないが、セメント固化体からの浸出にやや時間を要するために流出中に検出されるのに時間遅れが出現するものと思われる。廃棄物をセメント固化して地層中に埋設する場合に現われる水質変化の特徴として、 pH 値の変動が最も早いことを挙げることができよう。このことは通気層中に埋設した放射性廃棄物セメント固化体中に含まれる核種の移動を予測する指標として、 pH 値の変化を用いることができる可能性を示唆している。勿論、通常の土壌は pH 値の変化を緩衝する能力を有するため、 pH 値変化を核種移動の指標として用いる有効性については別に検討する必要がある。

固化体を用いない実験（前節）では地層流出水中の $Ca + Mg$ 濃度は地層流入水中濃度よりも増加したが、固化体を用いた本節の実験でも $Ca + Mg$ 濃度は増加した。ただし、 $Ca + Mg$ 濃度の増加量には特に流出初期について差が認められた（図-3.67 参照）。実験に用いた同じ砂について、パッチ法によって測定した、水道水と砂との相互作用についてはすでに図-3.2 に示した。同図は、水と砂と

を接触させる前後における水中の $Ca + Mg$ 濃度の増分と、炭酸カルシウムの溶解平衡反応について定義された飽和指数の増分との関係を図示している。図は、実験に用いた砂と水道水とが作る系においては砂中の $Ca + Mg$ が水中へ移行することを示している。砂中の $Ca + Mg$ が水中へ移行するかどうかは砂と地下水とが作る系が定まれば定まる。一般に、水中の $Ca + Mg$ 濃度が増加する場合には、減少する場合に比べて ^{90}Sr の分配係数値は小さくなるため、 ^{90}Sr の地層内での移動速度は速くなる。

本節で行なった実験では、地層表面全体に ^{90}Sr が供給される前節の実験と異なり ^{90}Sr がセメント固化体中に固化されている他、固化体の存在によって地層の水平断面内においても土壤水分の分布が一律でないと考えられるなどのため、前節で検討したように井上の拡張理論によって ^{90}Sr の地層内濃度分布を推定することができない。時間変換係数 Kfu を用いて ^{90}Sr の地層内濃度分布を推定するためには、前節で行なったように、例えば土壤水分の平均移動速度を知る必要があるが、本節の実験では固化体があるために土壤水分の平均移動速度を得ることは容易ではない。あるいは、固化体から浸出する HTO の地層内分布を知ることができれば、本章第5節で行なったように Kfu を用いて ^{90}Sr 分布を推定することができるが、本実験に用いた通気層模型では HTO の地層内分布を実測することは不可能である。

模型地層内での ^{90}Sr 分布を数値的に予測する場合に用いた、土壤水分の移動特性を記述する特性値 $\lambda(\theta)$ は、前節と本節とで値が同じではない。これは式(3-16)と式(3-24)とを比べると明らかである。前節で述べた方法によって $\lambda(\theta)$ の実験式を得る方法は、実験によって得られる原始データ(例えば、 $\psi - \theta$ の関係：図-3.59)が必ずしも滑らかではなく、しかもデータ処理を図解的・直感的に行なうため、得られた $\lambda(\theta)$ の実験式の値域はかなりの幅をもつ。この幅を定量的に評価することは難しいが、式(3-16)と式(3-24)との相違は、この実験式がもつ値域の変動幅に比較して著しく大きいとはいえない。式(3-16)、式(3-24)の両実験式は、実験開始後地層から浸透水が排出されるまでに要する時間の実測値と計算値とが一致するように選ばれている。

前節と同じく、本節でも不飽和状態での分配係数値 kd_u と飽和状態での分配係数値 kd との間に式(3-23)が成立することを想定した。この関係式はすでに述べたように、本章第3節で得られた実験式(3-5)を、その実験条件によって定まる適用範囲を越えて用いたものである。 ^{90}Sr の分配係数値が地層の水による飽和度の減少と共に大きくなるとする式(3-23)、あるいは式(3-5)を用いて推定した ^{90}Sr の地層内濃度の推定分布は実測分布とその分布パターンが比較的良好に一致する(図-3.71参照)。一方、土壤間隙が水で飽和されている条件下で測定した分配係数値と土壤間隙が水で飽和されていない条件下で測定した分配係数値との間には、有意な差異がない($kd_u = kd_s$)と考えて、 ^{90}Sr の地層内分布を推定すると、全ての ^{90}Sr 地層内等濃度線は実験開始後約450時間で模型地層を破過し、実測 ^{90}Sr 濃度分布(図-3.70)と推定濃度分布とは分布パターンが全く一致しない。これは、2つの分配係数値の間に式(3-23)の関係式が成立することを正当とする1つの傍証であるといえよう。

図-3.71をみると、地層内 ^{90}Sr の予測(推定)分布と実測分布とで分布のパターンが比較的良好に一致していることが解る。しかし、 ^{90}Sr 濃度が 100 pCi/g の実測等濃度線が固化体の下方深くまで分布している現象を、推定分布は説明し得ていない。一般に、基礎式を数値的に解いて得られる予測分布は、実測分布と比較すると、分布の先端付近、例えば図-3.71では深さ40cm付近での深さ方向

の濃度勾配が急である。予測分布の先端付近での深さ方向の濃度勾配が実測分布に比べて急である現象は本章第6節(図-3.64 参照)でも認められた。予測分布と実測分布の間のこの差違は、核種の地下水と土壌との間の交換反応を瞬時平衡型の式 $q = kd_d C$ によって評価していることに起因すると思われる。基礎式を数値的に解いて核種の移動を予測する場合には、瞬時平衡型の反応式を、時間 t による微分項を含む反応速度式に代えても解析上は何ら支障がない。今後、核種の地下水と土壌との間の反応を速度式で評価する検討が必要であろう。また、土壌水分の移動を記述する基礎式(3-21)が実験条件下にある地層中での水分の移動を予測するための妥当な式であるか否かについても検討する必要があると思われる。

前節および本節で用いた通気層模型実験装置では、地層内の局所的な地層特性を把握することができなかった。特に、前節の実験では地層表面付近での水平断面内飽和度(土壌水分)分布、本節の実験ではセメント固化体周辺での飽和度(土壌水分)分布を、直接把握することができれば、数値解による核種濃度分布の推定精度はさらに向上すると考えられる。

前節と同じく、数値解法による ^{90}Sr の濃度分布の予測法について検討する。図-3.73は3通りの予測法によって予測した ^{90}Sr の地層内濃度分布(左側に240時間後の分布、右側に790時間後の分布)を示している。反応式として $q = kd_s C$ を用い、土壌水分 θ の分布が最初から定常・平衡状態であると仮定すると、仮定しない場合 ($q = kd_d C$, θ : Non-steady) よりも速く ^{90}Sr は地層中を移動する。すでに述べたように、この現象が分配係数値として kd_d を用いるべきであるとする根拠である。本節の実験での雨水供給継続時間(約790時間)は、前節の実験の継続時間(約14時間)よりも長い時間、土壌水分の分布が最初から定常・平衡状態であると仮定するか否かの差が、 ^{90}Sr の予測分布に及ぼす差は前節の実験(図-3.65 参照)ほど著しくはない。降雨継続時間が長い場合には、土壌水分の分布が定常状態にあると仮定しても妥当であろうと思われる。

前節の実験(廃液浸透実験)と本節の実験(固化体降雨実験)との主要な差異は次のようである。廃液浸透実験では、模型通気層は一樣であるが、廃液の供給は一樣でない。模型通気層の中心軸付近の供給速度は大きく、壁面に近づく程小さくなる(図-3.49 参照)。一方、固化体降雨実験では、降雨の供給は一樣であるが、セメント固化体が地層内に設置されているために地層条件は一樣ではない。基礎式(3-21)~(3-22)を電算機を用いて数値的に解く場合に、まず問題になるのは境界条件の採り方である。前節および本節ではすでに述べたように、ほぼ同じ型の境界条件を用いている。著しい相違は地層の表面で与える土壌水分分

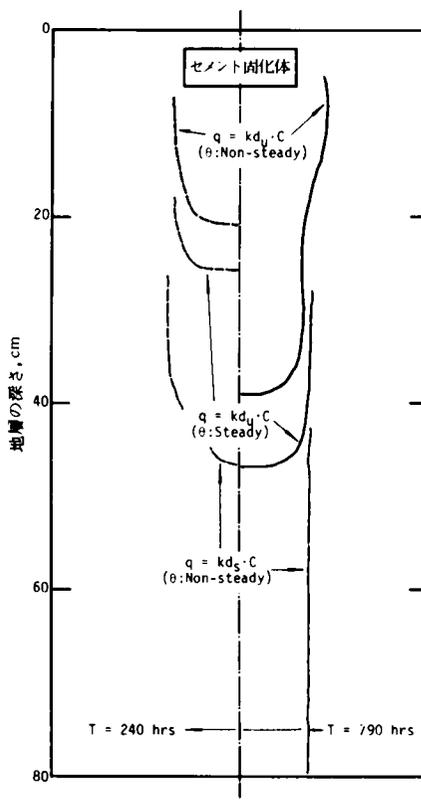


図-3.73 ^{90}Sr の地層内予測濃度分布の比較 ($^{90}\text{Sr} 500 \text{ pCi/g}$ の等濃度線で比較)

布の初期条件である。固化体降雨実験では、地層表面の初期土壌水分分布は一様であるが、廃液浸透実験では地層の中心軸付近に大きく壁付近では小さい、ほぼ指数関数的な分布を有している。前節の実験と本節の実験とは、このように実験条件が異なっている。しかし、依然として、前節の実験では ^{90}Sr の予測濃度分布と実測濃度分布とがほとんど一致しないのに比べて、本節の実験では両分布の一致度が大きい理由は明らかではない。現段階では、前節および本節での検討結果に基づいて、次のように結論するのが妥当であると思われる。すなわち、通気層での放射性核種の移動について論ずる場合には、核種の分配係数値としては式(3-23)で与えられる kd_u を用いるべきである。降雨の継続時間が長ければ、土壌水分の分布が降雨開始と同時に定常・平衡状態に達すると仮定することの近似誤差は小さくなる。それ故、この場合には式(2-59)の時間変換係数を用いることによって、すなわち kd_s の代わりに kd_u を用いることによって井上の拡張理論を近似的に適用することができる。井上の拡張理論をそのまま用いる(kd_u ではなく kd_s を用いる)と同一時間内に移動する核種の移動深さはより大きくなる。つまり、単純に井上の拡張理論を適用して放射性廃棄物地中処分の放射線学的安全性を評価する場合には、その評価誤差はここで得られた結論を採用する場合(kd_s の代わりに kd_u を用いる)の評価誤差に比べてより安全側に現われる。しかし、すでにみたように井上の拡張理論を修正せずに適用しても、前節の実験・解析条件下では安全性の評価誤差はなお危険側に現われ(図-3.64、図-3.65参照)、一方、本節の実験・解析条件下では安全性の評価誤差は安全側に過ぎることが解る(図-3.71、図-3.73参照)。第2章で提案した通気層での核種の移動速度を予測する方法について、さらに詳しく検討する必要がある。

通気層での核種の移動を近似的に予測する場合には、井上・赤木⁽⁶⁷⁾が提案した井上の拡張理論を kd_s ではなく kd_u を用いるように修正するべきであるとする本節の結論は、井上・赤木が示した理論的・実験的検討を補完するものである。井上・赤木が行なった実験では通気層の平衡飽和度はほぼ90%程度であったため、式(3-23)からも伺えるように kd_u と kd_s との差異は著しくなかったと思われる。

通気層においては、井上の修正拡張理論を用いるのは、あくまで近似手法であることに留意すべきである。同理論を適用する場合と、基礎式を数値的に解いて核種の分布を予測する方法を適用する場合の差異は次のようである。すなわち、井上の修正拡張理論を適用するには、通気層内部での土壌水分の平均移動速度、あるいは評価した位置でのトレーサの濃度変化実測値のように、主として地層流出端側で得られる境界条件値が必要であるのに対し、基礎式を数値的に解く方法を適用する場合には、地層表面での土壌水分量、核種濃度等地層流入端側で得られる境界条件値が必要である。この差異は、現象を実験的に解明しようとする場合の解明手順と、非実験的(解析的・数値的)に解明しようとする場合の手順とがほぼ逆であることに対応している。

計算条件下では、土壌水分の地層内での移動速度に最も主要な影響を及ぼす因子は、不飽和透水係数 $\lambda(\theta)$ と、初期条件として与える地層表面に与える土壌水分量 θ であった。 $\lambda(\theta)$ が大きくなれば土壌水分の移動速度が大きくなるのは当然である。一方、地層表面の土壌水分量が大きいかは、地層表面に供給される雨水量が大きいかに対応するから、地層表面の土壌水分が大きいためにその地層内移動速度が大きくなることは、やはり当然である。水分分散係数 $D(\theta)$ が大きいと、放射性核種の水平方向の分布幅が大きくなるが、深さ方向の分布パターンはほとんど変化がみられない。

3.7.6 まとめ

本節の検討によって得られた結論を整理するとつぎのようになる。

(1) 廃棄物をセメント固化して地層（通気層）中に埋設すると、固化体と接触する雨水浸透水中の pH 値が他の水質値の変化に先行して大きく変化（増加）する。しかも、 pH 値は長期にわたって増加する $Ca + Mg$ 濃度の変化に固化体の有無による差が大きく現われないこと、固化体に固化した HTO 濃度は比較的すみやかに固化体外へ浸出し、地層浸透水中の HTO 濃度が比較的早く検出限度以下に低下すること、等を考えると、地中処分場における放射性核種の漏出移動を予測するための先行指標として pH 値の変化を有効に利用できる可能性があるといえる。ただし、通常の土壌は pH 値変化を緩衝する能力を有するため、 pH 値の変化を先行指標として用いることのできる範囲については別に検討する必要がある。

(2) 液体放射性物質が地中に漏出する場合には、 ^{90}Sr の移動の先行指標として娘核種である ^{90}Y を使える可能性があったが、廃棄物をセメント固化して地中に埋設する場合には、 ^{90}Sr の浸出量が相対的に小さくなるため、先行指標として利用できないことがある。

(3) 地層の飽和度は給水開始後、すみやかに給水速度に応じた平衡値に達する。この平衡値は地層の深さが増すにつれて増加するが、一定深さ（実験条件下で約 50 cm）以深ではほぼ一定である。

(4) 地層内での ^{90}Sr の移動は、土壤水分の移動と密接な関係があると思われる。固化体周辺での土壤水分の移動パターンを反映して、地層内での ^{90}Sr の移動速度は断面平均的ではなく、固化体の下部において他に比べて特に大きい。

(5) 基礎式の数値解を得て ^{90}Sr の濃度分布を推定する場合には、土壤水分の移動を支配する特性値 $D(\theta)$ 、 $\lambda(\theta)$ をどのように評価するかが問題になる。しかしながら、これらの特性値、特に $\lambda(\theta)$ の実験式を得る方法は、鋭敏な方法ではない。 $\lambda(\theta)$ 、 $D(\theta)$ を実験的に定める手法を改良する必要があると思われる。

(6) 地層間隙が水で飽和されている場合と不飽和の場合に対応する 2 つの分配係数値の間に、式 (3-23) が成立する場合と、両者に差異がない場合について数値実験した。得られた ^{90}Sr の地層内推定分布と実測分布とを比較した結果、式 (3-23) の関係が成立すると考える方が、 ^{90}Sr の実測分布を説明する場合により妥当であった。

(7) 地層内 ^{90}Sr 濃度の予測分布と実測分布とは、分布パターンが比較的良好に一致している。予測精度を向上させるためには、核種の地下水と土壌との間の反応式を瞬時平衡型の式から非定常の反応速度式に切り替える他、地層の局所特性を計算に組み込む等の改良が必要であろう。

(8) 数値実験の結果によると、一定時間の間に移動する ^{90}Sr の移動深さは、土壤水分の地層内分布が実験開始後瞬時に定常・平衡状態に達すると仮定する場合には、仮定しない場合に比べて、また分配係数値が地層の水による飽和度に依存しないとみなす場合は、依存するとみなして式 (3-23) を用いる場合に比べてより深くなる。

(9) 降雨継続時間が長い場合には、地層内の土壤水分分布が瞬時に定常・平衡状態に達すると仮定することによって生じる、核種移動の近似誤差は小さくなる。この場合に井上の拡張理論を採用する場合には kd_s の代りに kd_u を用いる修正を行なう必要がある。ただし、この修正をしないことによって生じる人体に対する放射線学的安全性の評価誤差は安全側に現われる。

3.8 ま と め

本章では、前章で示した理論的検討を実験的に検証する他、現段階では理論的に記述できない事項を実験的に明らかにしたり、あるいは理論の適用除外例を実験的に明らかにしたりした。第2節では、放射性核種の地下水と土壌との間の分配係数値について検討した。本論文では、地中に漏出した放射性核種の移動速度は十分に遅く、それ故、放射性核種の地下水と土壌との間の交換反応は常に平衡状態にあると考えている。この仮定が妥当である場合には、放射性核種の地中移動の難易度を表わす指標として分配係数値の役割が重要になる。本節では主として地下水中のマクロイオン、すなわち、 Ca^{++} 、 Mg^{++} 、 H^+ に注目して、分配係数値の変化について論じた。すなわち、分配係数値の変化の様子はカルシウム過剰土の場合は、水中の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度に注目し、一方、カルシウム不足土では水の pH に注目して記述するのが妥当であること、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co および ^{90}Sr の分配係数値は土の種類によらずその大きさがこの順序で小さくなること、土壌間隙が水で飽和されているときの ^{90}Sr の分配係数値は、不飽和のときの値に比べて小さいこと等々の他、分配係数値と通水速度、土壌の陽イオン交換容量、測定方法、核種の存在状態との間には相関関係が認められる事等を明らかにした。

第3節では、本論文の検討除外項目である非イオン状放射性核種の地中移動特性について実験的に検討した。非イオン状放射性核種としては ^{90}Sr の娘核種である ^{90}Y を採用した。 ^{90}Y は通常の地下水の pH 域において、大部分が非イオン状態にあること、 ^{90}Y は低 pH 域では陽イオン状で存在し、 pH が高くなるにつれて非イオン状で存在し、この非イオン状 ^{90}Y は帯電していないと考えられること、非イオン状 ^{90}Y は土壌に収着され易いものと収着され難いものがあり、前者の非イオン状 ^{90}Y の分率は pH の増加と共に小さくなること、非イオン状 ^{90}Y の地中移動速度は早く、ほぼ地下水と同速度であること、さらに非イオン状 ^{90}Y の地中移動はイオン状核種の地中移動を記述する理論によっては、統一的に論ずることができないこと等を明らかにした。

第4節では、主としてカラム・システムを用いて、種々の放射性核種の地中移動特性を実験的に明らかにした。まず単一の放射性核種が地下水中に含まれている場合について検討した。その結果、放射性核種の地中（帯水層）での移動速度は、土壌中のカルシウムが溶解傾向にある場合は速く、逆の場合には遅いこと、前節の検討結果をも含めて ^{110m}Ag 、 ^{59}Fe は実験条件下の系において非イオン状態で存在すると思われること、その他の核種はイオン状で存在すると思われること等を明らかにした。ついで、多種類の核種が同時に地下水中に含まれる場合について検討した。多くの核種が同時に地下水に含まれている場合には、例えば、2イオン（核種と核種との交換反応にあづかるマクロイオン）間のイオン交換反応を前提にしている井上の理論は、理論的には適用することができない。しかしながら、実験結果によると、各イオンがおのおの独立に地層を構成する土壌と交換反応を起こすと考えて井上の理論を適用することにより核種の移動を予測しうること、および予測精度は多核種が共存する場合の核種の地中移動を論じた Sillen の Frontal analysis による予測精度に優ること等を明らかにした。

第5節では、帯水層模型実験装置を試作して、より大規模な実験を実施した。 ^{90}Sr 、 ^{60}Co 、 ^{137}Cs 他の放射性核種を封入するセメント固化体を模型帯水層内に設置し、ここに水道水を供給して、地層内における核種の移動を約3.5年の間追跡した。放射性核種の地層内分布を、井上の理論および基礎式を電算機を用いて数値的に解く方法によって予測し、実測分布と比較した。セメントで封入した7

種類の放射性核種の内、セメント固化体から浸出して地層内を移動した核種は ^{90}Sr (^{90}Y)であること、固化体の周辺では特に実験初期において水中 ^{90}Sr 濃度が大きくなるが、この高濃度域は地層を流下する間にその濃度を急速に低減させること、つまり地層中に ^{90}Sr の高濃度域が形成されても、その濃度域は流下と共に急速に減衰すること、地層模型流出水の水質の内特に pH 値の変化は著しく、しかもその変化は ^{90}Sr の移動に先行すること、土壌カラムを用いて測定した分配係数値と、長期間(約3.5年)を経た地層で測定された分配係数値とは異なったこと、すなわち、乱した土壌試料を用いて作った土壌カラムによって測定した分配係数値は実地層の分配係数値より小さくなると思われること(土壌カラムを用いて測定した分配係数値を用いて、廃棄物地中処分の安全性を評価すると、その評価誤差は安全側に現れること)、井上の理論による核種の予測濃度分布は、基礎式を数値的に解く方法による予測濃度分布に比べて、現時点ではよりよく実測濃度分布と一致すること、等を明らかにした。

前節までの検討結果と併せると、特に帯水層における放射性核種の移動を予測する場合には井上の理論を用いるのが有効であることが解る。

第6節および第7節では、通気層模型実験装置を試作して、それぞれ放射性核種が液状で地層に供給される場合、セメント固化体に封入された状態で地層に供給される場合について実験した。主として ^{90}Sr に注目し、 ^{90}Sr の地層内濃度分布を測定した。第2章で提案した、通気層における核種移動を記述する基礎式を差分近似し、電算機を用いて数値解を求めた。 ^{90}Sr の実測濃度分布と予測濃度分布とを比較して、第2章で提案した基礎式の妥当性を検証した。各節の検討で得られた結論は、それぞれ節の末尾に整理した。これらの結論のうち主要なもの、および両節の検討を通じて得られた結論はつぎのようである。すなわち、地層流出液中の pH や $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度は放射性核種の移動に先がけて移動するため、核種の移動を予測するための先行指標として用いること、実験条件下の地層の水による飽和度分布が定常・平衡状態に達するのに要する時間は、地層浸透水が地層端から流出を開始するのに要する時間のはば2倍程度であると考えられること、 ^{90}Sr の娘核種である ^{90}Y は常に ^{90}Sr の移動を予測する先行指標として使用できるとは限らないこと、通気層が放射性核種の移動速度を低減させる効果は大きいこと、通気層内での放射性核種の移動を土壌水分の非定常な移動と関連づけて予測する場合には、第2章で示した基礎式(2-50)と(2-55)とを用いざるを得ないこと、この場合通気層および帯水層での核種の分配係数値の間には式(3-23)の関係が成立すること、降雨継続時間が長い場合には地層内の土壌水分の分布が瞬時に定常・平衡状態に達すると考えて井上の拡張理論を一部修正して(kd_s の代りに kd_u を用いて)適用できること、ただし、この修正を用いない場合には人体に対する放射線学的安全性の評価誤差は安全側に現れること、基礎式を数値的に解いて核種の移動を予測する方法については kd_u 、 $\lambda(\theta)$ 、 $D(\theta)$ 等のパラメータの測定方法や数値解法の技術等についてなお検討を続けるべきであること、等である。

参 考 文 献

- (1) Himes, F.L. and Shufeldt, R.: Influence of some organic compounds on the movement of ^{90}Sr in soils, COO-414-11, (1969)
- (2) 酒井軍治郎: "地下水学", (1965), 朝倉書店
- (3) Caldwell, D.H. and Lawrence, W.B.: Water softening and conditioning problems--solution by chemical equilibrium methods, Industrial and Engineering Chemistry, 45[3], 535-548, (1953)
- (4) Fair, G.M. and Gayer, J.C.: "Water Supply and Waste Water Disposal", (1956), Jhon-Wiley and Sons
- (5) 京都大学工学部衛生工学教室: 現場打ちコンクリートによる地下水水質の変化に関する研究, 衛生工学岩井研究室(1969)
- (6) 井上頼輝・森澤真輔・山口泰正: 廃棄物の陸上埋立に起因する地下水汚染の現状と将来予測, 土木学会第11回衛生工学研究討論会論文集, 47~52, (1975)
- (7) 寺島 泰: 放射性廃棄物固化体中の放射性核種の溶出に関する研究, 保健物理, 6(3), 123~129, (1971)
- (8) 井上頼輝・森澤真輔・許邦福: 放射性廃棄物固化体からの放射性核種の溶出と帯水層中の挙動について, 土木学会第27回年次学術講演会講演概要集, Ⅱ-254, 697~698, (1972)
- (9) 寺島 泰: 放射性廃棄物の固化処理と海洋投棄処分とに関する研究, 京都大学博士学位論文, (1969)
- (10) 寺島 泰他: セメント固化体中 ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{60}Co の溶出機構について, 土木学会論文報告集, No 201, 51~60, (1972)
- (11) 寺島 泰他: 放射性廃棄物固化体中の放射性核種の溶出に関する研究, 保健物理, 5(1), 12~22, (1970)
- (12) 寺島 泰: 固化体中放射性核種の浸出過程とその解析方法とについて, 土木学会論文報告集, No 209, 51~61, (1973)
- (13) 岩井重久他: 高放射性廃液のセメント固化に関する研究, 保健物理, 1(1), 12~19, (1966)
- (14) 井上頼輝・森澤真輔: 放射性核種の土壌と水との間の分配係数値, 日本原子力学会誌, 18(8), 524~534, (1976)
- (15) Ranzon, D.: Practical use of the distribution coefficient for measurement of radioactive contamination of minerals in rocks, soil and underground waters, CEA-R-4274, (1972)
- (16) Pourbaix, M.: "Atlas of electrochemical equilibria in aqueous solution", (1966), Pergamon Press
- (17) Routson, R.C.: A review of studies on soil-waste relation-

ships on the Hanford Reservation from 1944 to 1967, BNWL-1464, UC-70, (1973)

- (18) 井上頼輝・森澤真輔：非イオン状⁹⁰Yの地中移動，日本原子力学会誌，18(7)，47～53，(1976)
- (19) 市川富士夫他(訳)：“放射化学の基礎”，(1962)，南江堂
- (20) 井上頼輝・森澤真輔：地下帯水層における放射性核種の挙動，土木学会第26回年次学術講演会講演概要集，Ⅱ-227，129～632，(1971)
- (21) 井上頼輝・森澤真輔：放射性廃棄物地中処分場の立地選定(Ⅰ)，日本原子力学会誌，14(10)，522～530，(1972)
- (22) Bailer, J.C. et al.: "Comprehensive Inorganic Chemistry", (1973), Pergamon Press
- (23) 市川富士夫：ラジオコロイドとその応用，化学と工業，19(8)，964～969，(1966)
- (24) 筒井天尊他：地中埋設地点地質調査報告書，京都大学原子炉実験所，(1972)
- (25) Marter, W.L.: Ground waste disposal practice at the Savannah River Plant, Proc. Symp. Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/7, 95-106, (1967)
- (26) 岩井重久・井上頼輝・西牧研社：再処理廃液中核種の地中移動，日本原子力学会誌，10(8)，435～440，(1968)
- (27) Baetsle, L.H. and Souffriau, J.: Installation of chemical barrier in aquifers and their significance in accidental contamination, Proc. Symp. Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/17, 229-239, (1967)
- (28) Olson, J.S.: Equations for caesium transfer in a Liriodendron forest, Health Physics, Vol.11, 1385～1392, (1965)
- (29) Lemenick, T.F. and Gardiner, D.A.: The occurrence and retention of radionuclides in the sediments of White Oak lake, Health Physics, Vol.11, 567-577, (1965)
- (30) Lemenick, T.F. et.al.: The behavior of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs in seepage pits at ORNL, Health Physic, Vol.13, 897-905, (1967)
- (31) Grove, D.B.: A method to describe the flow of radioactive ions in groundwater, SC-CR-70-6139, (1970)
- (32) Parker, F.L. et.al.: Dilution, dispersion and mass transport of radionuclides in the Clinch and Tennessee rivers. Proc. Symp. Vienne, IAEA, SM-72/3, 33-55, (1966)
- (33) Duguid, J.O.: Groundwater transport of radionuclides from buried waste; A case study at ORNL, WASH-1332,

Proc. 2nd AEC Environmental Protection Conf.,
511-529, (1974)

- (34) Robertson, J.B.: The influence of liquid waste disposal on the geochemistry of water at the NRTS, 1952-1970, IDO-22053, TID-4500, (1974)
- (35) Robertson, J.B.: Digital modeling of radioactive and chemical waste transport in the Snake river plain aquifer at the NRTS, IDO-22054, UC-70, USGS, (1974)
- (36) Merritt, W.F. and Mawson, C.A.: Retention of radionuclides deposited in the Chalk River Nuclear Laboratories waste management areas, AECL-4510, (1973)
- (37) Mawson, C.A.: Consequence of radioactive disposals into the ground. AECL-3123, (1969)
- (38) Merritt, W.F. and Mawson, C.A.: Experiences with ground disposal at Chalk River, Proc. Symp. Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/6, 79-93, (1967)
- (39) Parsons, P.J.: Migration from a disposal of radioactive liquid in sands, Health Physics, Vol.9, pp.333-342, (1963)
- (40) Merritt, W.F. and Parsons, P.J.: The safe burial of high-level fission product solutions incorporated into glass, Health Physics, Vol.10, pp.655-664, (1964)
- (41) 井上頼輝・森澤真輔：地下水の汚染，その現状と傾向，公害と対策，10(9)，919～930，(1974)
- (42) Tamura, T.: Sorption phenomena significant in radioactive waste disposal, Underground Waste Management and Environmental Implications, Memoir 18, pp.318-330, AAPG, (1972)
- (43) Gloyna, E.F. et.al.: Transport of radionuclides in a model river, Proc. Symp. Vienna, IAEA, SM-72/2, pp.11-32, (1966)
- (44) Mathur, R.P. and Grewal, N.S.: Underground travel of pollutants, Proc. 6th Int. Conf. on Water Pollution Research, Paper No.30, B-15-30, pp.1-7, (1972)
- (45) Inoue, Y. and Kaufman, W.J.: Prediction of movement of radionuclide in solution through porous media, Health Physics, Vol.9, pp.705-715, (1963)
- (46) 井上頼輝・森澤真輔：帯水層における放射性核種の移動 (I)，日本原子力学会誌，18(1)，42～50，(1976)
- (47) 井上頼輝・森澤真輔：帯水層における放射性核種の移動 (II)，日本原子力学会誌，18(6)，366～372，(1976)

- (48) 筒井天尊・西牧研社：放射性核種の帯水砂層中での挙動に関する基礎的研究，土木学会論文集，
No 200， pp. 25～29， (1972)
- (49) 森澤真輔：放射性廃棄物地中処分場の立地選定(Ⅳ)，日本原子力学会誌， 15(7)， 503～508.
(1973)
- (50) 桂山幸典・福井正美：CsおよびSrイオンの帯水砂層における吸・脱着反応について，土木
学会第28回年次学術講演会講演概要集，Ⅱ-253， 515～516， (1973)
- (51) Ahlstrom, S.W. et.al.: Methods for estimating transport
model parameters for regional groundwater systems,
BNWL-1717, (1974)
- (52) Rifai, M.N.E. et.al.: Dispersion phenomena in laminar
flow through porous media, Sanitary Eng. Res.
Labo., Univ. of California, Berkeley, (1956)
- (53) Green, D.W. et.al.: Numerical modeling of unsaturated
groundwater flow and comparison of the model to
field experiment, Water Resources Res., 6[3],
362-874, (1970)
- (54) Wolff, R.G.: Field and laboratory determination of the
hydraulic diffusivity of a confining bed, *ibid*,
6[1], 194-203, (1970)
- (55) Topp, G.C.: Soil water hysteresis in silt, loam and clay
loam soils, *ibid*, 7[4], 914-920, (1971)
- (56) Freeze, R.A.: Three-dimensional, transient, saturated-
unsaturated flow in a groundwater basin, *ibid*,
7[2], 347-366, (1971)
- (57) Dlouhy, Z.: Movement of radionuclides in the aerated zone.
Proc. Symp. Vienna, IAEA/ENAE, SM-93/18, 241-
249, (1967)
- (58) Brown, D.J.: Migration characteristics of radionuclides
through sediments underlying the Hanford re-
servation, *ibid*, SM-93/16, 215-228, (1967)
- (59) Schwille, F. et.al.: Model experiments on fluid flow in
the transition zone from unsaturated to saturated
soil, *ibid*, SM-93/11, 151-159, (1967)
- (60) 井上頼輝・森澤真輔・馬原保典：通気層における放射性核種の移動(Ⅰ)，日本原子力学会誌，
17(7)， 376～384， (1975)
- (61) 井上頼輝・森澤真輔・馬原保典：通気層における放射性核種の挙動(Ⅱ)，日本原子力学会誌，
18(9)， 600～605， (1976)
- (62) 井上頼輝・森澤真輔・馬原保典：通気層における放射性核種の挙動(Ⅲ)，日本原子力学会誌
(投稿中)
- (63) Childs, E.C.: "Soil water phenomena" (1969)
John-Wiley and Sons, London

- (64) Bruce, R.R. and Klute, R.: The measurement of soil moisture diffusivity, Soil Science Soc., 20, 458~462, (1956)
- (65) 農林省・土壤物理性測定法委員会編：“土壤物理性測定法”，(1972)，pp. 138，養賢堂
- (66) 井上頼輝：放射性廃棄物の地中処分に關する基礎的研究，京都大学博士学位論文，
(1970)
- (67) 井上頼輝・赤木文行：地下通氣層における放射性核種の挙動について，土木学会第26回
年次學術講演會講演集，Ⅱ-228，633~634，(1971)

第4章 放射性廃棄物地中処分場の立地選定

4.1 概 説

本章では、まず第2章、第3章で得られた成果を基にして、放射性廃棄物地中処分場の放射線学的安全性を評価する方法を提案する。同評価法を利用して、地中処分場の立地条件について検討した後、我国および欧米諸国の廃棄物管理施設の安全性を評価し、我国の施設と諸外国の施設の安全性を比較する。ついで、電算機を用いて所与の敷地内に、安全性を確保する立場から、廃棄物地中処分場の最適立地場所を選定する方法を提案し、同最適立地場所に立地した廃棄物地中処分場の立地要件について検討する。

本章で検討する諸事項は、第5章で検討するモニタリング・システムを併せて、処分に重点を置いてはいるものの、放射性廃棄物の安全管理の体系の主要な部分を占めている。

4.2 安全性の評価方法

放射性廃棄物を地中処分することによって、人体が受けると考えられる被曝線量を評価する方法は、第2章4節でも述べたように、種々提案されている。廃棄物処分の安全を評価する方法を逆の立場、つまり安全に廃棄物を処分あるいは管理する立場からみれば、安全に処分できる廃棄物量を決定する方法ともなる。現在提案されている種々の評価方法を、評価に採用されている基本的な考え方に注目して分類すると、(1)決定経路法^{(1)~(7)}(2)比放射能法^{(8)~(10)}および(3)排出点規制法^{(1),(11)}の3つになろう。決定経路法は、環境中に漏出した多くの放射性核種が種々の生態学的連関を経て最終的に人体に摂取されるに至る輸送経路の内、主要な経路(決定経路)、主要な核種(決定核種)を選び出し、最も大きな影響を受けるであろう集団(決定集団)に属する個人、または集団の受ける放射線障害を推定する方法である。この方法を所定の原子力施設に逆に適用する、つまり施設から排出される放射性物質による決定集団の放射線障害の程度を把握すれば、その障害の程度が許容できる程度に等しくなるような放射性物質の許容排出量を推定することができる。比放射能法は、体内における放射性核種の安定同位元素に対する比放射能が環境中における同比放射能を上回ることはないという仮定を前提にしている。それ故、環境中での放射性核種の許容濃度あるいは放射性核種の許容放出率は、体内負荷量が許容値となるような比放射能値を上限として定められることになる。この方法は、特に放射性物質による長期的な影響を評価する場合等には有効な手段になると考えられるが、同手法を適用することができない核種が存在したり、局地的な影響を評価したりする場合に難点がある等、評価方法それ自体として今後解決すべき問題が内在している。排出点規制の方法は、放射性廃棄物の環境への排出位置における濃度が許容値以下であることを要件とする方法である。あらかじめ設定する許容値が、放射性核種が人体に摂取されるに至る生態学的連関を十分に考慮して定められていない場合には重大な影響が現われる場合がある。

これらの評価方法あるいはその変法を適用して、廃棄物地中処分場あるいは廃棄物保管施設等についての安全性を評価した例はすでに多く発表されている。その一例として、米国で発表されている環境影響報告書⁽¹²⁾、主として英国の研究者によって発表されている決定経路法に基づく評価例^{(2),(4),}

(11),(13),あるいは評価法とその適用方法について論じたもの(14)~(20)等を挙げる事ができよう。また最近では、放射性物質による全地球的な汚染によって人類が世代を越えて受けるであろう放射線影響を評価する必要性から、放射能濃度ではなく、排出放射エネルギーに基づいた廃棄物の管理体系を完成することが説かれるようになってきている。(21)

本節で提案する安全性の評価方法は、地中に処分された廃棄物中の放射性核種が地中を移動し、種々の経路により最終的に人体に摂取されるまでの過程を定式化し、総合的に地中処分の安全性を検討するための一方法であり、その考え方の基礎を決定経路法に置いている。本節では、まず、放射性廃棄物を地中処分する場合の安全性を評価する方法を定式化し、ついで同方法によって最終的に人体が受けると考えられる潜在的内部被曝線量を試算し、同処分法が放射性廃棄物を安全に処分するための有望な方法であることを示す。

4.2.1 安全性評価の手順と仮定

本節では、検討の対象として原子力発電所から排出される放射性廃棄物を選ぶ。

原子力発電所は海岸に立地するものとし、発生する放射性固体廃棄物の全量を発電所敷地内で地中処分するものとする。地中

表-4.1 想定した放射性廃棄物の地中処分法

| | 前 処 理 法 | 処 分 法 |
|--------|----------------------------------|----------------|
| Case 1 | ドラム缶内でセメント固化 | コンクリート・ピット内に貯蔵 |
| Case 2 | ドラム缶内でセメント固化し、ドラム缶をアスファルトでコーティング | 直接に地中埋設 |
| Case 3 | セメント固化 | |

処分の方法としては表-4.1を、また地中に処分された廃棄物から漏出した放射性核種が環境中を移動し、最終的に人体に摂取される経路としては図-4.1を想定する。安全性評価の判定基準としては、ICRPが勧告した公衆の構成員に対する線量限度値を用い、図-4.1に示した経路によって人体が受けると考えられる内部被曝線量値がこの限度値より充分低い場合に地中処分が安全(放射線学的に安全)であると判断する。発電所そのものの立地および廃棄物の地中処分法に対する許容線量の割り当て等の検討は他の機会に譲る。

4.2.2 評価方法の定式化

表-4.1に示した地中処分の方法、図-4.1に示した放射性核種の環境中での移行経路に従って、評価方法を定式化する。第1の処分方法は、ドラム罐中にセメント固化した放射性廃棄物をコンクリート・ピット内に保管廃棄する方法(Case-1)で、この方法は我國の現行法規でも可能であり、例

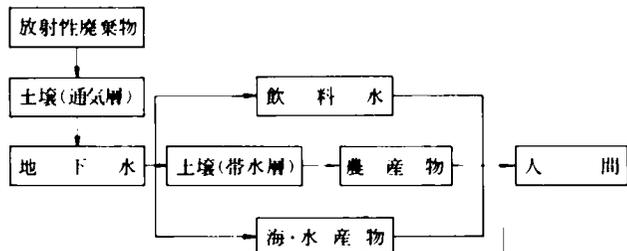


図-4.1 想定した放射性核種の環境中での移行経路

例えば、日本原子力研究所・東海研究所でも採用されている。第2の方法は、その内に放射性廃棄物をセメント固化したドラム罐の周囲をアスファルト・コーティングしたまま地中に埋設する方法（Case-2）である。第3の方法は裸のセメント固化体をそのまま地中に埋設する方法（Case-3）で、諸外国ではこうした処分法も採用されている。

(1) 放射性核種の漏出

セメントで固化された放射性核種は、第3章2節でも示したようにセメント水和反応によって形成される水和物中に強く保持される場合と、保持されない場合とがある。いずれにせよ、放射性核種のセメント固化体単位表面積当りの浸出速度 k ($1/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$) で表わせば、時刻 t までの累積浸出量 M_t は次式で与えられる。

$$M_t = M_0 \left\{ 1 - \exp \left[A \int_0^t (-k) dt \right] \right\} \quad \dots\dots\dots (4-1)$$

ここに、 A : セメント固化体の表面積（核種の浸出面積）
 M_0 : 放射性核種の初期封入量

一般的には k は時間の関数となるが、特に k が時間によらず一定であるとみなせる場合には、上式は

$$M_t = M_0 \left\{ 1 - \exp \left[-Akt \right] \right\} \quad \dots\dots\dots (4-2)$$

と簡単になる。

放射性核種がコンクリート・ピットの壁中を浸透・拡散する場合、コンクリート壁内での核種の移動現象が熱の伝導に類似な一次元拡散方程式で表わされるとすれば、コンクリート壁中を移動する核種の量 F_t は次式で与えられる。

$$F_t = D(C_0 - C_x) \left\{ \frac{1}{x} + \frac{2}{x} \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp \left\{ -\left(\frac{n\pi}{x}\right)^2 Dt \right\} \right\}$$

ここに、 D : 放射性核種のコンクリート壁内での拡散係数
 C_0, C_x : 各々壁内面 ($x=0$)、壁外面 ($x=x$) での核種濃度
 x : コンクリート壁の厚さ
 F_t : 時刻 t のとき壁外面 ($x=x$) を通過する核種のフラックス

ただし、定常状態に達した後では、上式は次のように簡単になる。

$$F_t = \frac{D}{x} (C_0 - C_x) \quad \dots\dots\dots (4-3)$$

廃棄物の地中処分を表-4.1のCase-1で行なう場合には式(4-3)の F_t から、またCase-2、Case-3で行なう場合には式(4-1)または式(4-2)の M_t から、地中へ漏出する放射性核種量を求めることができる。

(2) 放射性核種の地層中での移動と自然減衰

放射性核種の地層中での挙動は、帯水層における場合と通気層における場合とでは様相が異なる。これらの地層における核種の移動については第2章において理論的に、また第3章において実験的に論じた。本節では、放射性廃棄物の地中処分に伴って発生するであろう放射線障害の上限値を、定常解析によって評価することを目的にしているため、放射性核種の地層中での移動速度 v_A を、帯水層につ

いては式(4-4)で、通気層については式(4-5)で推定することにする。

$$K_f = \frac{v}{v_A} = 1 + \frac{1-f}{f} \rho k d \quad \dots\dots\dots (4-4)$$

$$K_{fa} = \frac{v_a}{v_A} = 1 + \frac{1-f}{fS} \rho k d \quad \dots\dots\dots (4-5)$$

ここに、 K_f, K_{fa} : 各々帯水層、通気層の K_f 値

v, v_a : 地下水および雨水の各々帯水層、通気層中の移動速度

f, S : 各々地層の空隙率および飽和度

ρ : 土壌の密度

$k d$: 放射性核種の分配係数值

前章第6節および第7節の検討成果に従えば、式(4-5)の代りに式(2-46)で定められる K_{fa} 値を用いるべきである。式 $q = k d_u \cdot C$ において使われる分配係数值 $k d_u$ の飽和度 S に関する関数形の妥当性についてはなお多くの土壌、核種について直接実験的に確かめる必要があること、式(2-46)を用いると安全性の評価誤差が危険側に現われる場合があること(前章第7節参照)、式(4-5)を用いることによって生じる安全性の評価誤差は過大ではあるが安全側に現われることがほぼ確かであること(前章第7節参照)、本章の目的は廃棄物を地中処分することによって生じる悪影響(被曝線量の上限值)を予測する方法を提示し、その適用例を示すことである。これらの理由から本節では式(2-46)の代りに式(4-5)を用いることにする。

また、放射性核種が地層中を移動するのに要する期間の自己崩壊の効果はつぎのように評価することにする。すなわち、例えば、通気層の厚さを H とすれば、当該放射性核種が通気層中を移動して帯水層に到達するのに要する時間 t は $t = H/v_A = HK_{fa}/v_a$ となる。故に、通気層を通過する間には、放射性核種の量は移種の自己崩壊定数を λ とすると、通気層へ流入する核種量の $\exp[-\lambda t] = \exp[-\lambda HK_{fa}/v_a]$ 倍に減少することになる。

(3) 放射性核種の帯水層中での拡散・希釈

通気層中を浸透して帯水層へ移行した放射性核種は地下水中で拡散する。深さ方向の流速、拡散を無視すれば、放射性核種の帯水層中での移動を記述する基礎式は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left\{ C + \frac{1-f}{f} \rho q \right\} = & -\frac{\partial}{\partial x} (D_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (D_y \frac{\partial C}{\partial y}) - \frac{\partial}{\partial x} (v_x C) \\ & - \frac{\partial}{\partial y} (v_y C) - \frac{0.693}{t_{1/2}} \left\{ C + \frac{1-f}{f} \rho q \right\} \quad \dots\dots\dots (4-6) \end{aligned}$$

ここに、 C, q : 核種の地下水中、土壌中濃度

D_x, D_y : 地下水の拡散係数

v_x, v_y : 地下水の流速

$t_{1/2}$: 核種の半減期

地層が一様で、かつ D_x, D_y, v_x, v_y が一定である場合について上式を解くと、廃棄物から漏出した核種が帯水層へ、定常かつ連続的に移行を開始した t 時間後の位置 (x, y) における放射性核種濃度 $C(x, y; t)$ が次式のように定まる。ただし単位のため $v_x \gg v_y$ と仮定する。

$$C(x, y, t) = \frac{q_1 K_f \exp\{xv_x/2D_x\}}{4\pi d \sqrt{D_x D_y}} \int_{-\infty}^{\ln \sqrt{\frac{b}{a}}(t-t_0)} \exp\{-2\mu \cosh s\} ds \quad \dots\dots\dots (4-7)$$

ただし、

$$a \equiv \frac{v_x}{4D_x K_f} + \frac{0.693}{t\sqrt{2}}, \quad b \equiv \frac{K_f}{4} \left(\frac{x^2}{D_x} + \frac{y^2}{D_y} \right)$$

ここに、 d ：帯水層の厚さ、または帯水層内での核種の混合深さ

q_1 ：放射性核種の帯水層への移行速度(フラックス)

それ故、放射性核種の地下水中で定常濃度 $C(x, y)$ は、上式で $t \rightarrow \infty$ とすることにより、

$$C(x, y) = \frac{q_1 K_f \exp\{xv_x/2D_x\}}{2\pi d \sqrt{D_x D_y}} K_0 \left[\sqrt{\left(\frac{v_x^2}{4D_x} + \frac{0.693 K_f}{t\sqrt{2}} \right) \left(\frac{x^2}{D_x} + \frac{y^2}{D_y} \right)} \right] \quad \dots\dots\dots (4-8)$$

となる。ここに K_0 は変型第2種ベッセル関数である。また、地下水流れの上方向 (x 軸上) での核種濃度 $C(x, 0)$ は、

$$C(x, 0) = \frac{q_1 K_f \exp\{xv_x/2D_x\}}{2\pi d \sqrt{D_x D_y}} K_0 \left[\sqrt{\frac{x^2}{D_x} \left(\frac{v_x^2}{4D_x} + \frac{0.693 K_f}{t\sqrt{2}} \right)} \right] \quad \dots\dots (4-9)$$

で与えられる。式(4-6)から、式(4-7)、式(4-8)、式(4-9)を得る場合には、核種の地下水中濃度 C と土壌中濃度 q との間に $q = kd \cdot C$ なる関係が成立することを前提としている。ここに kd は帯水層における核種の(平衡)分配係数である。

(4) 公共水域への流出と拡散・希釈

地中に漏出した放射性核種はやがては河川、湖沼、海等の公共水域へ流出する。ここでは、我国のほとんど全ての原子力施設が海岸に立地している現状に注目して、核種の海への流出と海洋での拡散・希釈について考える。

放射性核種の全量が、廃棄物処分場海岸の1点から同時に海水中に移行し、かつこの核種が海岸の1点を中心として中心角 θ の扇状に拡散していくとみなせる場合について考える。この場合、 t 時間後の放出点から r だけ離れた海水中での放射性核種濃度 $S(r, t)$ は次式で与えられる。

$$S(r, t) = \frac{M}{4\pi\theta P D_r t} \exp\left\{-\frac{r^2}{4D_r t} - \frac{0.693}{t\sqrt{2}} t\right\} \quad \dots\dots\dots (4-10)$$

ここに、 M ：海水中へ移行する核種量

P ：核種の海水中での平均混合深さ

D_r ：海水の拡散係数

故に、 t 時間後の最大濃度 $S_0(t)$ は、

$$S_0(t) = \frac{M}{4\pi\theta P D_r t} \exp\left[-\frac{0.693}{t\sqrt{2}} t\right] \quad \dots\dots\dots (4-11)$$

となる。一方、放射性核種の海水中への移行が定常かつ連続的に起る場合には、定常濃度 $S_c(r)$ は、

$$S_c(r) = \frac{q_2}{2\pi\theta P D_r} K_0 \left[\sqrt{\frac{0.693 r^2}{t\sqrt{2} D_r}} \right] \quad \dots\dots\dots (4-12)$$

となる。ただし、 q_2 は核種の海への移行速度(フラックス)である。

(5) 植物による放射性核種の濃縮

放射性核種を含む灌漑用水を用いて栽培された植物は、ある種の核種を選択的に濃縮する。植物によって強く濃縮される核種としては、一般的に、アルカリ金属、ハロゲン化合物および植物の必須栄養物質で、ついでアルカリ土類金属、植物栄養物質等があり、水に溶解しやすい程、また土壤に交換吸着され難いほど植物による濃縮は強く起る。⁽²²⁾ 同一核種についても植物による濃縮は、植物の種類・部位および生育期によってその様相を異にする。^{(23)~(25)} このように植物による核種の濃縮を一律に論ずることは難しいが、濃縮係数の概念を用いて次のように表わすことができる。

$$q_p = CF_p \cdot q \quad \dots\dots\dots (4-13)$$

ここに、 q_p : 植物中の放射性核種濃度
 q : 土壤中の放射性核種濃度
 CF_p : 植物による核種の濃縮係数

また、式(4-13)中の濃度 q は次式で試算することができる。

$$q = kd \cdot C \quad \dots\dots\dots (4-14)$$

ここに、 C : 地下水(灌漑水)中の核種濃度
 kd : 飽和状態での核種の分配係数

一方、海産物による放射性核種の濃縮も、農産物による核種の濃縮と同じくそのプロセスは複雑であり、一律に論ずることは困難である。ここでは、やはり濃縮係数を用いて、海産物による核種の濃縮を記述する。

$$q_{sf} = CF_{sf} \cdot S \quad \dots\dots\dots (4-15)$$

ここに、 S : 放射性核種の海水中濃度
 q_{sf} : 放射性核種の海産物中濃度
 CF_{sf} : 海産物による放射性核種の濃縮係数

核種の海水中濃度 S は式(4-10)、式(4-11)または式(4-12)で計算することができる。

(6) 人体の受ける内部被曝線量

本節では、地中に処分された放射性廃棄物中の核種が最終的に人体に摂取される経路として、3経路を考えた。人体の受ける内部被曝線量をより正確に推定するためには、これらの経路についての検討のほか、核種を濃縮した農・海産物をどの程度実際に摂取するかという、農・海産物の流通過程に関する検討が必要になる。ここでは、人体の受ける内部被曝線量を次式を用いて推定する。

飲料水を摂取する場合

$$D_{s,1} = D \frac{PdC}{MPC_w} \quad \dots\dots\dots (4-16)$$

海産物を摂取する場合

$$D_{s,2} = D \frac{P_{sf} q_{sf} I_{sf}}{2200 MPC_w} \dots\dots\dots (4-17)$$

農産物を摂取する場合

$$D_{s,3} = D \frac{P_p q_p I_p}{2200 MPC_w} \dots\dots\dots (4-18)$$

- ここに、 D : 公衆の構成員に対する線量限度（ICRPが勧告した職業人に対する許容被曝線量の1/10）
 MPC_w : 公衆の構成員に対する飲料水中許容濃度（職業人に対する水中最大許容濃度の1/10）
 q_{sf}, q_p : 海産物、農産物中の核種濃度
 I_{sf}, I_p : 海産物、農産物の摂取量
 P_d, P_{sf}, P_p : 核種を含む飲料水、海産物、農産物を摂取する確率

したがって、3つの経路による全内部被曝線量は次式で与えられる。

$$D_s = D_{s,1} + D_{s,2} + D_{s,3} \dots\dots\dots (4-19)$$

4.2.3 内部被曝線量の推定

(1) 放射性核種の地中への移行量

科学技術庁に設けられた放射性固体廃棄物処理処分検討会前処理技術分科会の報告書（第1稿）⁽²⁶⁾は、同じ軽水炉型発電炉においてもBWRの方がPWRよりも多くの廃棄物を排出することを示している。ここでは、1発電所敷地当たり合計出力200万KWeのBWRが設置され、発生する廃棄物の全量をセメント固化して地中処分すると仮定する。表-4.2は上記報告書の資料から計算した、原子炉の耐用年数を20年とした場合の、20年間の核種別廃棄物発生量である。

本節では、廃棄物を地中処分する方法として表-4.1を想定している。Case-1では、ドラム罐が破損しない限り核種が漏出することはない。したがって、なんらかの事故によってこれらのドラム罐のうち0.1%に破損が生じて、放射性核種がセメント固化体から浸出するものとする。コンクリート

・ピットの厚さを30cm⁽²⁷⁾、コンクリート中の核種の拡散係数は水の拡散係数と等しい、すなわち、 $D = 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 、コンクリート・ピット内部には年平均降雨量1500mm/yrの1%が貯まるとし、式(4-2)および式(4-3)を用いて、地中への核種漏出量を計算する。

Case-2では、ドラム罐壁をさらにアスファルトで保護しているので

表-4.2 合計出力200万KWeのBWR発電炉から発生する放射性廃棄物の核種別発生量

| 放射性核種 | 放射能蓄積量 [Ci] | 放射性核種 | 放射能蓄積量 [Ci] |
|-------------------|-------------|--------------------|-------------|
| ¹³⁷ Cs | 20440.6 | ⁵⁹ Fe | 6.0 |
| ⁹⁰ Sr | 1726.9 | ^{110m} Ag | 36.1 |
| ⁵⁸ Co | 266.1 | ⁶⁵ Zn | 0.9 |
| ⁶⁰ Co | 4013.3 | ⁹⁹ Mo | 3.2 |
| ⁵⁴ Mn | 31.0 | ¹³¹ I | 264.9 |

(註) 原子炉の耐用年数(20年)間に蓄積する量を、20年間の減衰効果を考慮して推定。

やはりドラム罐が破損しない限り核種は漏出しない。そこでこの場合は処分したドラム罐の1%が破損すると仮定して、Case-3と同じく式(4-2)によって核種の漏出量を計算する。計算結果を表-4.3に示す。ただし核種のセメント固化

表 - 4.3 処分した廃棄物から1年当り地中へ漏出する放射性核種量

| 放射性核種 | 浸出速度* [1/cm ² ·day] | 浸出量 [Ci/yr] | | |
|--------------------|-----------------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|
| | | Case 1 | Case 2 | Case 3 |
| ¹³⁷ Cs | 1.0×10 ⁻⁴ | 1.40×10 | 2.00×10 ² | 2.00×10 ⁴ |
| ⁹⁰ Sr | 6.0×10 ⁻⁶ | 1.18 | 1.68×10 | 1.68×10 ³ |
| ⁵⁸ Co | 7.5×10 ⁻⁸ | 2.50×10 ⁻⁵ | 3.54×10 ⁻⁴ | 3.54×10 ⁻⁶ |
| ⁶⁰ Co | 7.5×10 ⁻⁸ | 1.14×10 ⁻² | 1.63×10 ⁻¹ | 1.63×10 |
| ⁵⁴ Mn | 1.1×10 ⁻⁶ | 9.18×10 ⁻³ | 1.31×10 ⁻¹ | 1.31×10 |
| ⁵⁹ Fe | 3.5×10 ⁻⁷ | 3.34×10 ⁻⁷ | 4.76×10 ⁻⁶ | 4.76×10 ⁻⁴ |
| ^{110m} Ag | 7.1×10 ⁻⁹ | 4.17×10 ⁻⁶ | 5.94×10 ⁻⁵ | 5.94×10 ⁻⁴ |
| ⁶⁵ Zn | 2.0×10 ⁻⁸ | 2.85×10 ⁻⁷ | 4.06×10 ⁻⁶ | 4.06×10 ⁻⁴ |
| ⁹⁹ Mo | 1.0×10 ^{-4**} | 2.50×10 ⁻⁴³ | 3.56×10 ⁻⁴² | 3.56×10 ⁻⁴⁰ |
| ¹³¹ I | 1.0×10 ^{-4**} | 1.14×10 ⁻¹⁴ | 1.62×10 ⁻¹³ | 1.62×10 ⁻¹¹ |

* 表 - 3.5 参照 ** 想定値

体からの浸出速度値は、100日間の平均浸出速度(表-3.5参照)を用いた。⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Coについては寺島の報告値⁽²⁸⁾を、また実測値のない⁹⁹Mo, ¹³¹Iについては浸出速度の大きな¹³⁷Csの値を代用した。いずれの場合についても漏出時間を1年とし、漏出量には1年分の減衰効果を考慮した。

推定した、放射性核種の地中への漏出量(表-4.3)は想定する諸定数値の大小によって大きく変動する。例えば、Case-1について、ドラム罐の破損する確率が0.1%であることが妥当であるとしても、十分な時間が経過すればドラム罐は全て腐食するであろうから、いずれはドラム罐の破損率が100%に相当する事態が出現する。但し、それが何年後に出現するかを試算する基礎資料は現在では入手できない。それ故、表-4.3に与えた核種の漏出量は相当の(恐らくは安全側の)誤差を含んでいると考えねばならない。

(2) 海へ流出する放射性核種量

放射性廃棄物の地中処分場は海岸から1km離れた位置にあり、その地下水は一樣に海へ流出するものとし、地下水の平均流速を30cm/dayとする。地層の空隙率 f 、土壌の密度 ρ としては通常の地層でよく観測される値として $f = 0.40$, $\rho = 2.65 \text{ g/cm}^3$ を用いる。通気層での不飽和浸透流の流速は降雨等の気象条件によって大きく変化する。ここでは、通気層での浸透流流速が帯水層での流速の $1/10$ ⁽²⁹⁾すなわち3cm/dayであるとし、通気層の厚さを2m、飽和度を0.8とする。通気層での不飽和浸透流についてはその速度が0.648cm/day⁽³⁰⁾であるとの報告もあり、上記の値を採用すれば通気層のもつ核種保持効果を低く見積ることになるがその誤差は安全側に現われる。海へ流出する放射能を式(4-4)、式(4-5)を用いて計算し、その結果を表-4.4に示す。ただし⁵⁹Fe, ^{110m}Agは地下水中でその一部分がイオンとしては存在せず⁽³¹⁾、したがって前述の理論をそのまま適用することができない。ここでは実験結果から⁵⁹Feはその30% (図-3.26参照), ^{110m}Agは50% (図-3.25参照)が地下水と同じ速度で移動すると仮定した。⁹⁹Moについては分配係数値がないので最も安全側の値をとった。

(3) 飲料水、海産物および農産物中の核種濃度

地中処分場から地中に漏出した放射性核種は地下水中で拡散し希釈される。地下水中の核種濃度を式(4-9)で計算する。地中処分場から飲料水採取井戸までの距離を500m、地下水は廃棄物処分場

表 - 4.4 海へ移行する放射性核種量

| 放射性核種 | 地中での移動速度 | | 移動に要する時間 | 分配係数 kd | 海へ流出する放射能量 | | |
|--------------------|----------------------|----------------------|-------------------|---------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|
| | 通気層 | 帯水層 | | | Case 1 | Case 2 | Case 3 |
| | (cm/day) | (cm/day) | (year) | (ml/gr) | (Ci/yr) | (Ci/yr) | (Ci/yr) |
| ¹³⁷ Cs | 9.6×10^{-4} | 1.5×10^{-2} | 1.9×10^4 | 500 | 1.1×10^{-187} | 1.6×10^{-186} | 1.6×10^{-184} |
| ⁹⁰ Sr | 6.8×10^{-3} | 1.1×10^{-1} | 2.6×10^3 | 70 | 3.2×10^{-29} | 5.3×10^{-28} | 5.3×10^{-26} |
| ⁵⁸ Co | 4.8×10^{-3} | 7.5×10^{-2} | 3.8×10^3 | 100 | 3.2×10^{-5784} | 1.5×10^{-5782} | 1.5×10^{-5780} |
| ⁶⁰ Co | 4.8×10^{-3} | 7.5×10^{-2} | 3.8×10^3 | 100 | 1.4×10^{-386} | 2.0×10^{-385} | 2.0×10^{-383} |
| ⁵⁴ Mn | 3.2×10^{-3} | 5.0×10^{-2} | 5.6×10^3 | 150 | 1.7×10^{-2040} | 2.4×10^{-2039} | 2.4×10^{-2037} |
| ⁵⁹ Fe | 3.0 | 3.0×10 | 9.3 | * | 4.3×10^{-30} | 6.1×10^{-29} | 6.1×10^{-27} |
| ^{110m} Ag | 3.0 | 3.0×10 | 9.3 | * | 8.9×10^{-11} | 1.3×10^{-9} | 1.3×10^{-7} |
| ⁶⁵ Zn | 5.3×10^{-3} | 8.3×10^{-2} | 3.4×10^3 | 90 | 4.2×10^{-200} | 6.0×10^{-199} | 6.0×10^{-197} |
| ⁹⁹ Mo | 4.1×10^{-1} | 6.3 | 4.7×10 | 1 | 4.9×10^{-1889} | 6.9×10^{-1888} | 6.9×10^{-1886} |
| ¹³¹ I | 3.0 | 3.0×10 | 9.3 | 0 | 1.6×10^{-260} | 2.3×10^{-259} | 2.3×10^{-257} |

*: 分配係数の考え方が適用できないことを意味する(本文参照)。

表 - 4.5 放射性核種の分配係数值および農産物・海産物による濃縮係数

| 放射性核種 | 分配係数值* | 濃縮係数 | |
|--------------------|---------|-------|-----------------|
| | | 農産物** | 海産物** |
| | (ml/gr) | (-) | (-) |
| ¹³⁷ Cs | 500 | 0.1 | 50 |
| ⁹⁰ Sr | 70 | 10 | 100 |
| ⁵⁸ Co | 100 | 1 | 10^4 |
| ⁶⁰ Co | 100 | 1 | 10^4 |
| ⁵⁴ Mn | 150 | 10 | 10^4 |
| ⁵⁹ Fe | 5 | 0.1 | 8×10^4 |
| ^{110m} Ag | 10 | 100** | 150 |
| ⁶⁵ Zn | 90 | 10 | 4×10^4 |
| ⁹⁹ Mo | 1 | 10 | 500 |
| ¹³¹ I | 1** | 1 | 10^4 |

*: バッチ法による測定値

** : 想定値

*** : Menzel, R. G. (22)による

**** : 文献(34)より引用

から井戸に向かって流れているとする。地下水の流速は 30 cm/day , 拡散係数は $D_x = D_y = 0.1 \text{ cm}^2/\text{sec}$, $d = 1 \text{ m}$ なる値を用いる。式(4-9)を用いて計算した結果を表-4.6に示す。

前節で計算した核種が廃棄物処分場海岸の1地点から連続的に流出すると仮定して式(4-12)で海水中での核種濃度を計算し、また式(4-15)で海産物中に濃縮される核種の濃度を計算し、計算結果を表-4.6に示す。ただし、海産物の採取位置を $r = 100 \text{ m}$, $D_r = 10^4 \text{ cm}^2/\text{sec}$ (32) , $P = 6 \text{ m}$, $\theta = \pi$ (33) なる値を用い、海産物による核種の濃縮係数は表-4.5の値を用いる。

人間が食用に供する農産物の根入れ深さは30

~50 cm, 深くて1~2 mであり通常は地下水面上に

ある。したがって、地下水が地表面に湧出する様な特殊な場合を除けば、一度帯水層に達した放射性核種によって農耕に利用される地表面近くの土壌が汚染されることは考えられない。ここでは前述の飲料水採取井戸から汲みあげた地下水を灌漑用水として用いる場合について考える。農産物による核種の濃縮係数值、核種の分配係数值を表-4.5に、式(4-13)を用いて計算した農産物中の核種濃度を表-4.6に示す。表-4.5に示した放射性核種の分配係数值の内特に⁵⁹Fe, ^{110m}Ag, ⁹⁹Moおよび¹³¹Iの分配係数值は表-4.4で用いた分配係数值と異なっている。植物による放射性核種の濃縮を評価する場合の分配係数值は、核種の地中移動を評価する場合と異なり、土壌と地下水(灌漑水)との相対運動から考えても、バッチ法による測定値(表-4.5)を用いるべきである。カラム法による測定

表-4.6 飲料水、海産物および農産物中の放射性核種濃度

| 核種 | 飲料水中濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$) | | | 海産物中濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{g}$) | | | 農産物中濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{g}$) | | |
|--------------------|-------------------------------------|------------------------|------------------------|------------------------------------|-------------------------|-------------------------|------------------------------------|------------------------|------------------------|
| | MPCw | Case-1 | Case-2 | Case-3 | Case-1 | Case-2 | Case-3 | Case-1 | Case-2 |
| ^{137}Cs | 2×10^{-5} | 1.3×10^{-59} | 1.9×10^{-58} | 9.0×10^{-191} | 1.3×10^{-189} | 1.3×10^{-187} | 6.6×10^{-58} | 9.1×10^{-59} | 9.1×10^{-57} |
| ^{90}Sr | 4×10^{-7} | 2.5×10^{-15} | 4.2×10^{-14} | 5.2×10^{-32} | 8.5×10^{-31} | 8.5×10^{-29} | 1.8×10^{-12} | 2.9×10^{-11} | 2.9×10^{-9} |
| ^{58}Co | 1×10^{-4} | 9.1×10^{-606} | 1.3×10^{-604} | 5.2×10^{-5785} | 2.5×10^{-5783} | 2.5×10^{-5781} | 9.1×10^{-604} | 1.3×10^{-602} | 1.3×10^{-600} |
| ^{60}Co | 5×10^{-5} | 7.7×10^{-239} | 1.1×10^{-237} | 2.2×10^{-387} | 3.1×10^{-386} | 3.1×10^{-384} | 7.7×10^{-237} | 1.1×10^{-235} | 1.1×10^{-233} |
| ^{54}Mn | 1×10^{-4} | 4.2×10^{-304} | 5.6×10^{-303} | 2.8×10^{-2041} | 2.6×10^{-2040} | 2.6×10^{-2038} | 5.9×10^{-301} | 8.7×10^{-300} | 8.7×10^{-298} |
| ^{59}Fe | 6×10^{-5} | 3.1×10^{-22} | 4.2×10^{-21} | 5.5×10^{-30} | 7.8×10^{-29} | 7.8×10^{-27} | 1.5×10^{-22} | 2.2×10^{-21} | 2.2×10^{-19} |
| ^{110m}Ag | 3×10^{-5} | 2.5×10^{-13} | 8.7×10^{-12} | 2.2×10^{-13} | 3.0×10^{-12} | 3.0×10^{-10} | 2.5×10^{-10} | 8.7×10^{-9} | 8.7×10^{-7} |
| ^{65}Zn | 1×10^{-4} | 2.1×10^{-255} | 3.0×10^{-254} | 2.8×10^{-200} | 3.8×10^{-199} | 3.8×10^{-197} | 1.9×10^{-252} | 2.7×10^{-251} | 2.7×10^{-249} |
| ^{99}Mo | 2×10^{-4} | 1.5×10^{-324} | 2.2×10^{-323} | 4.0×10^{-1891} | 5.6×10^{-1890} | 5.6×10^{-1889} | 1.5×10^{-323} | 2.2×10^{-322} | 2.2×10^{-320} |
| ^{131}I | 2×10^{-6} | 1.9×10^{-88} | 2.7×10^{-87} | 2.5×10^{-261} | 3.6×10^{-260} | 3.6×10^{-258} | 1.9×10^{-88} | 2.7×10^{-87} | 2.7×10^{-85} |

値(表-4.4)を用いると,上記4核種については植物による濃縮が考えられるにもかかわらず,核種が土壌に吸着されない($kd=0$)ことになり,植物による核種の濃縮を評価できなくなる。ここでは,バッチ法によって測定した分配係数值(表-4.5)を用いる。

農産物および海産物による放射性核種の濃縮係数は各々文献値を採用した。^{(22),(34),(35)}

(4) 内部被曝線量

放射性核種を含む飲料水,海産物,農産物を摂取することによって受けると考えられる内部被曝線量を各々式(4-16),式(4-17),式(4-18)で計算し,その結果を表-4.7に示す。ここでは $P_d = P_{sf} = P_p = 1.0$,すなわち決定集団に属する個人が放射性核種を含む飲料水,海産物,農産物のみを摂取するものと仮定する。海産物の摂取量 I_{sf} を 300 g/day ,農産物摂取量 I_p を 1000 g/day とする。表-4.7に示した内部被曝線量の推定値は,廃棄物を地中処分することによって,決定集団に属する個人が受けると考えられる線量の増加分であることに注意する必要がある。

表-4.7に示した被曝線量そのものは,多くの仮定の下に算定されたものであるから,仮定条件を変えることによって任意に変えることができる。表-4.7の推定値は絶対的な意味をもつ値ではなく,むしろ廃棄物地中処分法の相対的安全性あるいは地中処分法の安全性を概観するための資料であると考えべきである。また表-4.7には比較のため非常に小さな被曝線量の推定値もそのまま掲げている。これらの被曝線量の推定値は確率的な意味を有しているといえる(以下同じ)。

表-4.7 廃棄物を地中処分することによって生じる内部被曝線量の増分

| 核種 | 飲料水の経路 | | | 海産物摂取の経路 | | | 農産物摂取の経路 | | |
|--------------------|------------------------|------------------------|------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|
| | Case-1 | Case-2 | Case-3 | Case-1 | Case-2 | Case-3 | Case-1 | Case-2 | Case-3 |
| ¹³⁷ Cs | 3.3×10 ⁻⁵² | 4.5×10 ⁻⁵¹ | 4.5×10 ⁻⁴⁹ | 3.1×10 ⁻¹⁸⁴ | 4.4×10 ⁻¹⁸³ | 4.4×10 ⁻¹⁸¹ | 7.3×10 ⁻⁵¹ | 1.1×10 ⁻⁵¹ | 1.1×10 ⁻⁵⁹ |
| ⁹⁰ Sr | 1.9×10 ⁻⁵ | 3.1×10 ⁻⁴ | 3.1×10 ⁻² | 5.2×10 ⁻²⁶ | 8.8×10 ⁻²⁵ | 8.8×10 ⁻²³ | 5.9×10 ⁻³ | 9.8×10 ⁻² | 9.8 |
| ⁵⁸ Co | 1.4×10 ⁻⁵⁹⁸ | 1.9×10 ⁻⁵⁹⁷ | 1.9×10 ⁻⁵⁸⁵ | 1.1×10 ⁻⁵⁷⁷⁸ | 5.0×10 ⁻⁵⁷⁷⁷ | 5.0×10 ⁻⁵⁷⁷⁵ | 6.3×10 ⁻⁵⁹⁷ | 8.7×10 ⁻⁵⁹⁶ | 8.7×10 ⁻⁵⁹⁴ |
| ⁶⁰ Co | 2.3×10 ⁻²³¹ | 3.4×10 ⁻²³⁰ | 3.4×10 ⁻²²⁸ | 8.9×10 ⁻³⁶¹ | 1.3×10 ⁻³⁶⁰ | 1.3×10 ⁻³⁵⁸ | 1.1×10 ⁻²²⁹ | 1.5×10 ⁻²²⁸ | 1.5×10 ⁻²²⁶ |
| ⁵⁴ Mn | 5.9×10 ⁻²⁹⁷ | 8.7×10 ⁻²⁹⁶ | 8.7×10 ⁻²⁹⁴ | 5.5×10 ⁻²⁰³⁵ | 5.5×10 ⁻²⁰³⁴ | 5.5×10 ⁻²⁰³² | 4.2×10 ⁻²⁹⁴ | 5.9×10 ⁻²⁹³ | 5.9×10 ⁻²⁹² |
| ⁵⁹ Fe | 7.7×10 ⁻¹⁵ | 1.1×10 ⁻¹³ | 1.1×10 ⁻¹¹ | 1.9×10 ⁻²³ | 2.6×10 ⁻²² | 2.6×10 ⁻²⁰ | 1.8×10 ⁻¹⁵ | 2.4×10 ⁻¹⁴ | 2.4×10 ⁻¹² |
| ^{110m} Ag | 1.2×10 ⁻⁵ | 4.5×10 ⁻⁴ | 4.5×10 ⁻² | 1.4×10 ⁻⁶ | 2.0×10 ⁻⁵ | 2.0×10 ⁻³ | 5.6×10 ⁻⁴ | 2.0×10 ⁻¹ | 2.0×10 |
| ⁶⁵ Zn | 1.1×10 ⁻²⁴⁸ | 1.5×10 ⁻²⁴⁷ | 1.5×10 ⁻²⁴⁵ | 1.8×10 ⁻¹⁹⁴ | 2.6×10 ⁻¹⁹³ | 2.6×10 ⁻¹⁹¹ | 4.2×10 ⁻²⁴⁶ | 6.3×10 ⁻²⁴⁵ | 6.3×10 ⁻²⁴³ |
| ⁹⁹ Mo | 1.2×10 ⁻³¹⁷ | 1.5×10 ⁻³¹⁶ | 1.5×10 ⁻³¹⁴ | 4.0×10 ⁻¹⁸⁸⁵ | 5.6×10 ⁻¹⁸⁸⁴ | 5.6×10 ⁻¹⁸⁸² | 5.2×10 ⁻³¹⁷ | 7.3×10 ⁻³¹⁶ | 7.3×10 ⁻³¹⁴ |
| ¹³¹ I | 2.8×10 ⁻⁷⁹ | 3.8×10 ⁻⁷⁸ | 3.8×10 ⁻⁷⁶ | 5.3×10 ⁻²⁵³ | 7.4×10 ⁻²⁵² | 7.4×10 ⁻²⁵⁰ | 1.3×10 ⁻⁹⁹ | 1.8×10 ⁻⁷⁸ | 1.8×10 ⁻⁷⁶ |

(注) 被曝線量の単位はmrem/yr

4.2.4 地中処分の安全性

(1) 個人線量

種々の仮定及び実測値を用いて、放射性廃棄物を地中処分することによって最終的に人間が受けると考えられる内部被曝線量を計算した。これらの計算結果から次の様な結論を得ることができる。

地中に漏出した放射性核種の移動速度は極めて遅く、例えば、⁹⁰Srの移動速度は約0.1cm/dayで、海へ流出するまでに約2,600年を要することが解る(表-4.4参照)。この期間に⁹⁰Srは自然減衰によって約 3×10^{-29} 倍に減少する。土壌単位量当りの陽イオン交換容量はイオン交換樹脂のはほぼ1/10~1/100であるにもかかわらず、その地中での移動速度が小さいことは地層全体として、土壌が持つ核種の保持固定能が大きいことの実証例ともいえよう。通気層と帯水層の持つ核種保持固定能は、本計算では通気層の厚さをわずか2mとしていることから考えて、通気層の方が相対的に大きいものと推定できる(表-4.4参照)。

本節では、3つの処分法について検討した。人体に与える内部被曝線量が低い程、処分法の安全性が高いとすれば、当然ながら、Case-1、Case-2、Case-3の順に安全性は低くなる。しかしながら、本報告で採用した条件下においては、これら処分法の差は最終的な内部被曝線量にそれほど影響しない。ただし、Case-1、Case-2はCase-3と異なり事故解析を行なっていることに留意する必要がある。

核種についてみれば、地中処分の安全性を支配する決定核種が^{110m}Agと⁹⁰Srであることがわかる。^{110m}Agが内部被曝線量に与える効果が大きいのは、^{110m}Agが地下水中でイオンとしては存在しない場合があるとの実験結果を計算に採用し、^{110m}Agの分配係数値を0、つまり地中を地下水と同速度で移動するとしたことに起因する。^{110m}Agがラヂオコロイドを形成し易い核種であることは文献⁽³⁶⁾にも報告されている。^{110m}Agは原子力発電所でのようなプロセスによって作られるのか明らかでなく、またその

半減期が短いこと等から従来あまり注目されなかった。本計算は半減期が短くても、安全性を決定する上で重要な核種となり得ることを示している。一方、保健物理学上重要な核種である ^{137}Cs 、 ^{60}Co については次の様な結論を得ることができる。すなわち、 ^{137}Cs はコンクリート固化体から比較的速く浸出するが土壌によって強く保持固定され、一方 ^{60}Co は土壌による保持固定は ^{137}Cs ほど強くはないがコンクリート固化体からの浸出速度が極めて遅いため、いずれも安全性を判定する上で重要な核種にはならない。

経路の差による安全性については、核種の移動距離などの条件が異なるため厳密な比較はできないが、本計算で用いた条件下では、農産物、飲料水、海産物の経路の順に安全性が高くなる。3経路が併存する場合にその安全性を高めるには農産物の経路を遮断、つまり、例えば地下水を灌漑用水として用いないことが最も有効な手段となる。放射性廃棄物の地中処分場を沿岸に立地させると、農産物、飲料水の経路を遮断することが容易であるから、この意味からは有利である。ただし、次に述べる様にこれは処分場の内陸立地を無条件に否定する理由にはならない。

最終的に人体が受けると考えられる内部被曝線量（表-4.7参照）は、いずれの処分法を採用する場合でも、I.C.R.P.が勧告した公衆の構成員に対する線量限度 $500\text{mrem}/\text{yr}$ よりも低くなる。さらにフォール・アウトを除く自然放射線からの被曝線量が生殖腺に対して $125\text{mrem}/\text{yr}$ 、骨細胞に対して $137\text{mrem}/\text{yr}$ 、骨髄に対して $1220\text{mrem}/\text{yr}$ であり、また1963年におけるフォールアウト中の核種からの体外被曝線量への寄与が $15\sim 20\text{mrem}/\text{yr}$ であること⁽³⁷⁾などと比較すると表-4.7中の値はそれ程大きいとはいえない。したがって、これらの点からは地中処分が、放射性廃棄物を最終処分する為の安全かつ有望な方法になりうる事が伺える。ただし表-4.7の値は、廃棄物を地中処分することからのみ受ける内部被曝線量の増分を表わしたものであり、地中処分の安全性を最終的に判定する為には許容線量を各用途に割りあてる問題が残されていること、およびここで行なった試算の結果が必ずしも現実の処分場の安全性を表わしていないことに留意する必要がある。

すでに述べた様に、地中に処分した廃棄物が再び人体に摂取されるのは数十年～数千年後である。すなわち、廃棄物を地中処分した影響が現われるのは、その廃棄物を排出した発電所の耐用年限がすぎ、世代が交代した頃になってからである。それ故、地中処分の安全性の評価をより正確に行なう為には、計算に用いた種々のパラメーターの値をより正確にする努力の他に、それらパラメーターの経時変化による線量値の変化をも考慮する必要がある。

(2) 国民線量

放射性廃棄物の地中処分を実施するには、廃棄物を処分することによって決定グループに属する個人が受ける身体的影響が許容限度以下であると同時に、国民全体に対する遺伝的影響が有意なレベル以下でなければならない。表-4.7に示した決定集団に属する公衆の構成員が受けるであろう内部被曝線量の推定値は、I.C.R.P.が勧告した線量限度、自然放射線によって受ける被曝線量よりも小さい。一方、I.C.R.P.は遺伝的障害の制限に関して、全集団に対する遺伝線量として1世代（30年）当り1人 5rem という限度を勧告し、この被曝量を職業上の被曝、特殊グループの被曝、集団全体の被曝および保留分に割り当てる例示を行なっている。⁽³⁸⁾しかし、この遺伝線量限度を集団の被曝源となる各種の線源にどのように割り当てるべきかについては何ら勧告していない。また、遺伝的影響を防護するための線量限度値について、国際的な合意はいまだ得られていない。⁽³⁹⁾放射性廃棄物の処分は単に1

つの被曝源にすぎず、現在のところこれに関する制限値は各国で独自に設定されている。例えば、イギリスでは廃棄物処分によって全国民のうける平均被曝線量は1世代当り1 remを越えてはならないと考えられている。^{(11), (39)}西ドイツでは原子力産業に起因する遺伝線量は1世代当り2 remを越えてはならないと提案されており、イタリアおよびスウェーデンではその考え方を示す方法として原子力発電単位容量当りのman・remで表わした集団線量を用いることが検討されている。⁽³⁹⁾いま仮に、放射性廃棄物処分によって全国民がうける平均線量が1人1世代(30年)当り1 remを越えてはならないものと規制し、この線量を気圏・水圏・地圏に等しく割り当てれば、地中処分に割り当てられる許容線量は $1/90 \text{ rem/yr}$ ($1/3 \text{ rem} \cdot 30 \text{ 年間}$)となる。他方、1985年までに開発される原子力発電規模を4900万kWeとし、⁽⁴⁰⁾これを発電規模200万kWeの発電所約25個所で分担し、生じる廃棄物をすべて敷地内で地中処分するものとする。地中処分の影響(表-4.7)が、半径15 km以内の住民に及ぶものとして、日本全体の国民線量を計算すると、処分方法をCase-1, Case-2, Case-3とする場合に依じて各々約 $1.2 \times 10 \text{ man} \cdot \text{rem/yr}^*$, $5.6 \times 10^2 \text{ man} \cdot \text{rem/yr}^*$, $5.6 \times 10^4 \text{ man} \cdot \text{rem/yr}^*$, 国民1人当りの平均被曝線量は各々 $1.2 \times 10^{-7} \text{ rem/yr}$, $5.6 \times 10^{-6} \text{ rem/yr}$, $5.6 \times 10^{-4} \text{ rem/yr}$ となる。これは自然放射能からの被曝線量および前述の $1/90 \text{ rem/yr}$ に比べて小さい値である。ここでは、廃棄物処分場を中心として半径15 km以内の居住人口として、日本の建設中を含む10原子力発電所についての平均値75,000人を採用している。⁽⁴¹⁾このような試算にはよほど問題の本質をみきわめないと、単なる計算に陥って大きな誤りを犯す危険性がひそんではいないが、地中処分の実施が国民全体に対し、どの程度の影響を及ぼすかを推定するための目安を得ることはできる。⁽⁴²⁾

放射性廃棄物地中処分の安全性を総合的に評価するためには、本節で行なった主として放射線学的な安全性の検討だけでなく、社会的・経済的・心理的な問題についても十分に検討しなければならない。

4.2.5 ま と め

本節における検討によって明らかになった結論を整理するとつぎのようになる。

(1) 本節で提案した放射性廃棄物地中処分の放射線学的安全性を評価する方法は、廃棄物の最終処分法として地中処分法を採用できるか否かを判断する場合の有効な手段となる。

(2) 種々の仮定に基づいて算定した、廃棄物の地中処分によって生じると考えられる潜在的内部被曝線量は、個人線量、国民線量ともに小さく、このことは廃棄物の最終処分法として地中処分法が有効かつ有望でありうることを示している。

(3) 単位量の土壌が放射性核種を保持・固定する能力(交換容量)は、人工の合成イオン交換樹脂のもつ交換容量に比べると $1/10 \sim 1/100$ と小さいが、地層全体が核種を保持・固定する能力は充分に大きい。本節で採用した条件下では、放射性核種が地中処分場から公共水域にまで移動するのに要する時間は数10年~数1000年であり、この間に放射性核種は自然崩壊によって減少する。

(4) 放射性廃棄物地中処分の安全性を評価する場合の決定核種は ^{90}Sr と $^{110\text{m}}\text{Ag}$ である可能性が大きい。 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ が決定核種になるのは、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ が地下水中で非イオン状態で存在し、地下水とはほぼ同速度で地中を移動すると考えられるからである。第2章3節で理論的に考察したように、半減期が短い

* 決定集団に属する個人の推定被曝線量の上限值(表-4.7参照)に、半径15 km以内の居住人口75,000人を乗じた数値。極めて安全側の推定値である。

という理由だけで安全性についての検討対象から除外すると、危険な場合があることを示す好例であるといえる。一方、保健物理学上重要な核種である ^{60}Co 、 ^{137}Cs は各々つぎの理由によって、決定核種になる可能性が小さい。すなわち、 ^{60}Co はセメント固化体からの浸出速度が小さく、 ^{137}Cs はセメント固化体からの浸出速度は大きいと土壌によって強く保持・固定される。

(5) 放射性廃棄物地中処分の安全性を評価する場合の決定経路は、放射性核種を含む地下水を灌漑用水に用いて栽培した農産物を摂取する経路になる可能性が大きい。それ故、農産物摂取の経路を工学的防護措置あるいは適切な管理を行なうことによって遮断できれば、地中処分の安全性は飛躍的に改善されよう。農産物摂取の経路を遮断することの難易およびその有効性について考えると、地中処分場の立地場所は内陸よりも沿岸の方が望ましいと思われる。

(6) 本節で行なった安全性の評価では、決定集団として、放射性核種を含む飲料水、海産物および農産物のみを摂取する集団を想定した。本方法を現実の原子力施設の安全評価に適用する場合には、食糧品の流通調査、食習慣の調査等によって決定集団を同定する必要がある。

(7) 本節で安全性を評価するために採用した評価式および種々の仮定は研究・調査の進展に応じて改訂しなければならない。また、地中処分場の安全性を向上させるための工学的防護措置とその有効性について別途検討する必要がある。

4.3 地中処分場の立地条件

放射性廃棄物地中処分場の立地条件は、放射線学的安全性の面、経済性の面、技術的可能性の面、社会心理的な面等多くの視点から総合的に検討されるべきである。^{(42)~(53)} 本節では、これら4つの視点の内でも特に重要と考えられる放射線学的安全性を確保する立場から、廃棄物地中処分場の安全性について検討する。

廃棄物地中処分場の放射線学的安全性に注目した立地条件は、地中処分された廃棄物中に含まれる放射性物質がどのような経路を経て人間に摂取され、かつその影響がどの程度になるかを推定することによって明らかにすることができる。IAEA（国際原子力機関）は地中処分の立地条件として表-4.8を提示している。⁽⁴⁵⁾ すなわち、地中処分した廃棄物からの放射性核種のみ出を考えると、液体や

表-4.8 地中処分の立地条件

(文献(45)より引用)

| 要素 | 好条件 | 悪条件 |
|-----------|--------------------------------------|--|
| 廃棄物の物理的性状 | 固体 | 液体、汚泥 |
| 廃棄物の化学的性状 | アルカリ、中性、低塩分濃度 | 酸、高塩分濃度 |
| 放射性物質の性状 | 短寿命の核種 | 長寿命の核種、陰イオン性の核種 |
| 地理的条件 | 降雨量少 河川湖沼より遠い 人口密集地より遠い | 降雨量大 河川湖沼に近い 人口密集地に近い |
| 地質（地球化学） | 砂質で締め固められていない土で 溶解性カルシウム塩を多く含まぬこと | 亀裂のある岩、交換容量のない土、 カルシウムや、溶解性の塩を多く含む土 |
| 水文学的要素 | 地下水位が深い 地下水の流速小 地表水に出るまでの距離が大 | 地下水位が浅い 地下水の流速大 地下水はすぐ川に出る |

スラッジより固体を処分の方が安全性が高く、一度漏出した核種の地中移動を考えると、土は交換容量が大きく透水性が低いことが望ましい。また、地下水と地表面との間が広いほど核種の移動距離が長くなって有利であるから、降雨が少ないことも条件の1つになる。ところで、廃棄物地中処分場の立地をより具体的に検討しようとする場合には、定性的に記述されたこれらの条件のいずれをまず第1に優先させるべきかという問題が生じる。本節では、感度解析の手法を用いて、廃棄物地中処分場の立地条件を定量的に評価する方法について論じ、地中処分場として望ましい条件を明らかにする。同時に、種々の因子の被曝線量に対する感度（感度係数）を用いた被曝線量の近似計算法および立地条件の評価図表を提案する。

4.3.1 感度解析による地中処分場の立地条件

(1) 基礎式

地中に漏出した放射性核種が環境中を移動する過程の定式化については、前節で詳しく検討した。放射性核種の地中での移動経路として、前節と同じく3経路（図-4.1参照）を考える。すなわち、放射性核種を含む地下水を直接飲用する経路、核種を含む海産物を摂取する経路および核種を濃縮した農産物を摂取する経路である。これら各経路による内部被曝線量は、前節の結果を整理することによって、各々つぎのように与えられる。

地下水を飲用する経路からは、

$$\frac{Ds_{,1}}{q_0} = \frac{Pd Kf D}{2\pi d \sqrt{D_x D_y} MPC_w} \exp \left[-\frac{L_1 v}{2D_x} - \frac{0.693}{t_{1/2}} \frac{HKfa}{v_a} \right] \\ \times K_0 \left[\sqrt{\frac{L_1^2}{D_x} \left(\frac{v^2}{4D_x} + \frac{0.693}{t_{1/2}} Kf \right)} \right] \quad \dots (4-20)$$

海産物を摂取する経路からは、

$$\frac{Ds_{,2}}{q_0} = \frac{P_s f I_s f C F_s f D}{2200 MPC_w 2\pi \theta P D_r} \exp \left[-\frac{0.693}{t_{1/2}} \left(\frac{HKfa}{v_a} + \frac{L_2 Kf}{v} \right) \right] \\ \times K_0 \left[\sqrt{\frac{0.693 r^2}{t_{1/2} D_r}} \right] \quad \dots (4-21)$$

農産物を摂取する経路からは、

$$\frac{Ds_{,3}}{q_0} = \frac{P_p I_p C F_p k d Kf D}{2200 MPC_w 2\pi d \sqrt{D_x D_y}} \exp \left[\frac{L_3 v}{2D_x} - \frac{0.693}{t_{1/2}} \frac{HKfa}{v_a} \right] \\ \times K_0 \left[\sqrt{\frac{L_3^2}{D_x} \left(\frac{v^2}{4D_x} + \frac{0.693}{t_{1/2}} Kf \right)} \right] \quad \dots (4-22)$$

となる。したがって、3つの経路から受ける内部被曝線量の和 D_s は、

$$\frac{D_s}{q_0} = \frac{Ds_{,1} + Ds_{,2} + Ds_{,3}}{q_0} \\ = \frac{D}{2200 MPC_w} \exp \left[-\frac{0.693}{t_{1/2}} \frac{HKfa}{v_a} \right]$$

$$\begin{aligned} & \times \left\{ \frac{2200PdKf}{2\pi d\sqrt{DxDy}} \exp\left(-\frac{L_1v}{2Dx}\right) K_0 \left\{ \sqrt{\frac{L_1^2}{Dx} \left(\frac{v^2}{4Dx} + \frac{0.693}{t_{1/2}} Kf \right)} \right\} \right. \\ & + \frac{Psf Isf CFsf}{2\pi\theta PDr} \exp\left(-\frac{0.693}{t_{1/2}} \frac{L_2Kf}{v}\right) K_0 \left\{ \sqrt{\frac{0.693r^2}{t_{1/2}Dr}} \right\} \\ & \left. + \frac{Pp Ip CFp kd Kf}{2\pi d\sqrt{DxDy}} \exp\left(-\frac{L_3v}{2Dx}\right) K_0 \left\{ \sqrt{\frac{L_3^2}{Dx} \left(\frac{v^2}{4Dx} + \frac{0.693}{t_{1/2}} Kf \right)} \right\} \right\} \end{aligned}$$

となる。 …………… (4-23)

ここに、 H ：通気層の厚さ、または処分した廃棄物から地下水面までの距離

L_1 ：処分場から飲料用地下水採取地点までの距離

L_2 ：処分場から公共水域（海）までの距離

L_3 ：処分場から灌漑用地下水採取地点までの距離

v ：帯水層での地下水の平均流速

v_a ：帯水層まで到達する雨水の通気層内平均浸透流速

r ：海産物が採取される海岸からの距離

q_0 ：放射性核種の地中への漏出率（フラックス）

上記以外の記号は前節で用いたと同じ意味で用いる。

式(4-23)中に含まれる変数はその性格から3種類に大別することができる。第1は放射性核種が定まれば定まる変数で、 D 、 MPC_w 、 $t_{1/2}$ 、 CF_{sf} 、 CF_p がそれである。これらの変数は多くの核種が存在する場合には離散変数となる。第2は、国民の生活様式が定まれば定まる変数で、 I_{sf} 、 I_p がそれに当る。第3は、放射性廃棄物の地中処分場が定まれば定まる変数で、 f 、 ρ 、 S 、 kd 、 v_a 、 v 、 d 、 D_x 、 D_y 、 P_{sf} 、 P_p 、 P_d 、 θ 、 P 、 Dr 、 r 、 H 、 L_1 、 L_2 、および L_3 がそれである。本節では、第3の変数群のうち Dr 、 D_x 、 D_y および r を除く16変数に注目して地中処分場の立地条件を検討する。

(2) 感度計算

基礎式(4-23)を一般的につきのように書くことにする。

$$D_s = D_s(\boldsymbol{x}; \boldsymbol{P}) \quad \text{…………… (4-24)}$$

ここに \boldsymbol{x} は、式(4-23)中変数値をとる環境因子・生態学的因子、つまり前述の第3の変数群の内、 Dr 、 D_x 、 D_y を除く16変数および q_0 を要素とするベクトル、また \boldsymbol{P} は式(4-23)中定数値をとる環境因子・生態学的因子を要素とするベクトルである。変数 \boldsymbol{x} の基準状態を \boldsymbol{x}_0 、 $\boldsymbol{x} = \boldsymbol{x}_0$ に対応する D_s の値を D_{s0} 、すなわち $D_{s0} \equiv D_s(\boldsymbol{x}_0; \boldsymbol{P})$ とすれば、内部被曝線量 D_s に対する変数 \boldsymbol{x} の*i*番目の要素 x_i の感度を次式で定義することができる。

$$\frac{\partial \ln D_s}{\partial \ln x_i} = \frac{x_{i0}}{D_{s0}} \cdot \frac{\partial D_s}{\partial x_i} \quad \text{…………… (4-25)}$$

式(4-25)は変数 x_i がその基準値 x_{i0} に相対的に1単位変化した場合に 変化する被曝線量 D_s の D_{s0} に対する相対変化量を示す。この値（感度）が大きい変数 x_i ほど地中処分場の立地条件としては重要である。 $\partial D_s / \partial x_i$ は感度係数である。

式(4-25)で定義される感度は基準状態 \boldsymbol{x}_0 によって変化するため、感度を用いて立地条件を検討す

るには、基準状態 α_0 を合理的に選定する必要がある。基準状態 α_0 を設定することは、廃棄物地中処分場の基準位置を定めることに対応する。基準位置は、必ずしも実在する発電所敷地内部に設定する必要はなく、全く仮想的な位置であってもよい。一般には、その立地条件を比較しようとする地中処分場候補地の平均的な特性を示す位置を基準に選ぶのが好ましい。ここでは表-4.9のような基準位置を設定し、感度計

表 - 4.9 想定した地中処分場の基準位置

| 定 数 | | |
|---|---|---|
| D = 3 rem/yr | MPC _w = 4×10^{-7} μ Ci/ml | $t_{1/2} = 10^4$ days |
| I _{sf} = 300 g/day | I _p = 1000 g/day | D _x = 1.0 cm ² /sec |
| D _y = 1.0 cm ² /sec | D _r = 10 ⁴ cm ² /sec | r = 100 m |
| 変 数 | | |
| H = 2 m | L ₁ = 500 m | L ₂ = 1 km |
| L ₃ = 500 m | v _a = 3.0 cm | v = 30 cm |
| CF _{sf} = 100 ml/g | CF _p = 10 | P _{sf} = 1 |
| P _p = 1 | P _d = 1 | $\theta = \pi$ |
| P = 6 m | d = 1 m | k _d = 70 ml/g |
| S = 0.8 | f = 0.4 | $\rho = 2.6$ g/cm ³ |
| q ₀ = 1 Ci/yr | | |

算は、前節の検討によって、地中処分の安全性を考える場合に決定核種になる可能性が強いことが明らかになった核種⁹⁰Srについて代

表的に示す。表-4.9の基準位置は我国に立地する諸原子力施設の平均的特性を表わしていると考えてよい。すなわち、この基準位置は海岸から1 km、飲料用地下水および灌漑用地下水の採水井戸から各々500 m離れた位置にあり、同位置での通気層の厚さは2 m、飽和度は0.8、雨水の浸透速度は3 cm/day、帯水層内での⁹⁰Srの拡散深さは1 m、地下水流速は30 cm/day、地層の空隙率は40%（ほぼ砂質ローム層に対する値）⁽⁵⁷⁾、土壌密度は2.65 g/cm³である。⁹⁰Srを含む地下水・海産物・農産物を摂取する確率は安全を考えて100%とした。

(3) 計算結果

表-4.9で設定した基準位置での各変数の被曝線量に対する感度の計算結果を表-4.10に示す。基準位置での内部被曝線量は $D_{s0} = 1.4 \times 10^2$ mrem/yrである。すでに述べたように、表-4.10に示した感度は基準値（基準位置での環境因子の値 α_0 ）のとり方によって違った値をとる。すなわち、一般にはある環境因子の被曝線量に対する感度は、他の変数の関数となるので、感度の大小関係を一義的に論ずることはできない。感度および感度係数の値は基準位置によって変化するがその符号は変化しない。表-4.10は地中処分場の立地条件を検討する場合、 f, L_3, v, ρ, kd 等が特に重要な役割を果たすことを示している。

表-4.11は感度係数値の符号および基準位置における各環境因子と被曝線量との関係を示したものである。表-4.11は H, L_1, L_3, kd, d, ρ が大きい位置ほど、また $v, v_a, P_p, P_d, S, f, CF_p, q$ が小さい位置ほど被曝線量が小さくなり、したがってそれだけ地中処分場として好ましいことを示している。表-4.12は、これらの環境因子値が変化した場合に、各変数の被曝線量に対する寄与率（感度係数）がどのように変化するかを示している。表中、正の符号は $\partial^2 D_s / \partial x_i \cdot \partial x_j > 0$ 、すなわち、

表-4.10 基準位置における各環境因子の感度

| | | | | | |
|--|-------------------------|---|--------------------------|--|-------------------------|
| $\partial \ln D_s / \partial \ln H$ | $= -1.58$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln L_1$ | $= -5.29 \times 10^{-2}$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln L_2$ | $= 0$ |
| $\partial \ln D_s / \partial \ln L_3$ | $= -1.68 \times 10$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln v$ | $= 5.61$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln v_a$ | $= 1.58$ |
| $\partial \ln D_s / \partial \ln kd$ | $= -1.08 \times 10$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln P_{sf}$ | $= 0$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln P$ | $= 9.97 \times 10^{-1}$ |
| $\partial \ln D_s / \partial \ln P_d$ | $= 3.13 \times 10^{-3}$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln \theta$ | $= 0$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln f$ | $= 0$ |
| $\partial \ln D_s / \partial \ln d$ | $= -1.00$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln s$ | $= 1.58$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln \rho$ | $= 1.97 \times 10$ |
| $\partial \ln D_s / \partial \ln \rho$ | $= -1.18 \times 10$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln CF_{sf}$ | $= 0$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln CF_p$ | $= 9.97 \times 10^{-1}$ |
| $\partial \ln D_s / \partial \ln q_0$ | $= 1.00$ | | | | |

表-4.11 感度・感度係数の符号および各環境因子と被曝線量との相関

| | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
|------------|----------------|----------------|----------------|---|----------------|----|-----------------|----------------|----------------|---|---|---|---|---|---|------------------|-----------------|----------------|
| H | L ₁ | L ₂ | L ₃ | v | v _a | kd | P _{sf} | P _p | P _d | θ | P | d | s | f | ρ | CF _{sf} | CF _p | q ₀ |
| 感度・感度係数の符号 | - | - | - | + | + | + | - | + | + | - | - | - | + | + | - | + | + | + |
| 被曝線量への寄与* | - | - | 0 | + | + | + | - | 0 | + | 0 | 0 | 0 | + | + | - | 0 | + | + |

* プラス符号は環境因子値の増加と共に被曝線量も増加することを、ゼロは環境因子値が変化しても被曝線量はほとんど変化しない事を示す。

x_i, x_j が増加すればおのおの $\partial D_s / \partial x_j, \partial D_s / \partial x_i$ つまり x_j, x_i の感度係数が大きくなることを示す。負の符号は $\partial^2 D_s / \partial x_i \partial x_j < 0$ つまり x_i, x_j が増加すればおのおの x_j, x_i の感度係数が減少することを示し、ゼロは $\partial^2 D_s / \partial x_i \partial x_j = 0$ またはゼロとみなせること、すなわち x_i, x_j が増減しても x_j, x_i の感度係数が変化しないこと、あるいは変化が無視できる程小さいことを示す。例えば、表-4.12は地中処分場の候補位置から灌漑用地下水採取井戸までの距離 L_3 が増加すれば $q_0, CF_p, f, S, P_p, v_a, v, \rho$ の被曝線量に対する感度係数は減少し、 ρ, d, kd, L_3, H の線量に対する感度係数は増加することを示す。一方、表-4.11からこれらの感度係数値の符号を知ることができるから、結局 L_3 が増加することによって、 $q_0, f, S, P_p, v_a, v, \rho, d, kd, L_3, H$ の被曝線量に対する感度係数の絶対値は小さ

くなるのがわかる。このことを L_3 について考察すると次のようになる。すなわち、 L_3 が大きいという地中処分場立地条件の重要度が、 L_3 が大きくなることによって相対的に小さくなることを意味する。この関係を感度を用いて図示したものが図-4.2である。図中、絶対値は感度の符号が負であることを意味する。同図より感度の大小関係は固定しておらず環境因子の値によって変化することがわかる。例えば、地中処分場候補地から灌漑用地下水採取井戸までの距離が680 m以上になると、 L_3 が大きいという立地条件と L_1 が大きいという立地条件との優劣関係が逆転する。

放射性物質の地中への漏出率 q_0 を除けば、一般的に各変数は互いに独立ではなく、したがって後述べるような立地条件の優劣関係も基準位置のとり方によって変化する。

式(4-25)より明らかのように感度と感度係数の符号は等しい。以下では、立地条件(各環境因子

表-4.12 環境因子と感度係数との相関

| | 環境因子の感度係数 | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
|------------------|-----------|-----------------|------------------|---|---|---|---|---|---|----------------|----------------|-----------------|----------------|----------------|---|----------------|----------------|----------------|---|
| | q | CF _p | CF _{sf} | p | f | s | d | P | θ | P _d | P _p | P _{sf} | k _d | V _a | V | L ₃ | L ₂ | L ₁ | H |
| H | - | - | 0 | + | - | - | + | 0 | 0 | - | - | 0 | + | - | - | + | 0 | + | + |
| L ₁ | - | 0 | 0 | + | - | - | + | 0 | 0 | - | 0 | 0 | + | - | - | 0 | 0 | + | |
| L ₂ | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | |
| L ₃ | - | - | 0 | + | - | - | + | 0 | 0 | 0 | - | 0 | + | - | - | + | | | |
| V | + | + | 0 | - | + | + | - | 0 | 0 | + | + | 0 | - | + | + | | | | |
| V _a | + | + | 0 | - | + | + | - | 0 | 0 | + | + | 0 | - | - | | | | | |
| k _d | - | - | 0 | + | - | - | + | 0 | 0 | - | - | 0 | + | | | | | | |
| P _{sf} | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | | | | | | | |
| P _p | + | + | 0 | - | + | + | - | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | | | | | | | |
| P _d | + | 0 | 0 | - | + | + | - | 0 | 0 | 0 | | | | | | | | | |
| θ | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | | | | | | | | | | |
| P | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | | | | | | | | | | | |
| d | - | - | 0 | + | - | - | + | | | | | | | | | | | | |
| s | + | - | 0 | - | + | - | | | | | | | | | | | | | |
| f | + | + | 0 | - | + | | | | | | | | | | | | | | |
| p | - | - | 0 | + | | | | | | | | | | | | | | | |
| CF _{sf} | 0 | 0 | 0 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| CF _p | + | 0 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| q | 0 | | | | | | | | | | | | | | | | | | |

NOTE ; $\partial^2 Ds / \partial x_i \partial x_j = \partial^2 Ds / \partial x_j \partial x_i$ for all i, j

$\left. \begin{array}{l} + ; \text{ means } \partial^2 Ds / \partial x_i \partial x_j > 0 \\ - ; \text{ means } \partial^2 Ds / \partial x_i \partial x_j < 0 \\ 0 ; \text{ means } \partial^2 Ds / \partial x_i \partial x_j = 0 \\ \text{ or nearly equals to zero} \end{array} \right\}$

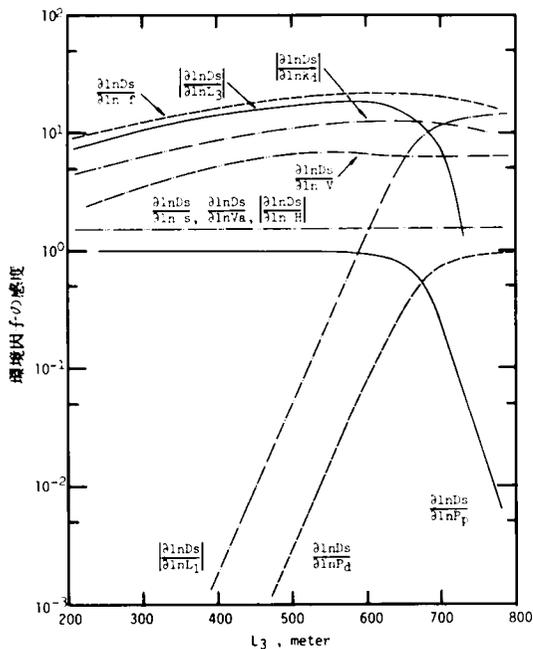


図-4.2 感度値の処分場から灌漑用水採取井戸までの距離 L_3 による変化

の重要度)を比較する場合は感度を、また被曝線量を近似計算する場合には主として感度係数を用いる。

(4) 立地条件の検討

まず、各経路について検討する。本節では放射性物質が人体に摂取される経路について、飲料水、海産物、農産物の3経路を考えている。各経路の長さを変化させた場合の被曝線量を表-4.13に示す。表-4.13中Case-2は基準位置を、Case-1、Case-3はそれぞれ各経路の長さのみが変化した場合を表わす。表-4.13は農産物(L_3)、飲料水(L_1)、水産物(L_2)の経路の順に総線量に占める経路の割合が低下し、3経路の

線量がほぼ同程度となるのはCase-3の場合であることを示している。ところで、我国の多くの原子力発電所については $L_2 > L_3, L_1$ であり、この大小関係が逆転することは考えられない。したがって、地中処分場の立地条件としては、まず L_3, L_1 が大きいたことが望ましく、ついで L_2 が大きいたことが望ましい。このことは同時に上述の3経路が併存する場合には放射性核種を濃縮した農産物を摂取する確率 P_p が他の確率 P_{sf}, P_d に比べて特に重要な役割を果すことを示している。廃棄物地中処分場が海岸に立地し、処分場敷地の地下水が一様に海に向っている場合には、 L_1, L_3 が無大、すなわち農産物、飲料水の経路がなくなるので、地中処分場の安全性は飛躍的に改善される。地中処分場が内陸に立地し、かつ L_1, L_2, L_3

表 - 4.13 地理的条件を変化させた場合の経路別内部被曝線量

| 計算例 経路 | Case-1 | Case-2 | Case-3 |
|-----------|-----------------------------------|---|---|
| | $L_1 = L_2 = L_3 = 500 \text{ m}$ | $L_1 = L_3 = 500 \text{ m}, L_2 = 1 \text{ km}$ | $L_1 = 500, L_2 = 600, L_3 = 650 \text{ m}$ |
| 全経路 | 1.1×10^2 (100.0%) | 1.1×10^2 (100.0%) | 1.7 (100.0%) |
| 飲料水 | 3.5×10^{-1} (3.3%) | 3.5×10^{-1} (0.3%) | 3.5×10^{-1} (20.0%) |
| 水産物 | 3.2×10^{-13} (-) | 3.2×10^{-27} (-) | 6.8×10^{-1} (40.0%) |
| 農産物 | 1.3×10^3 (99.7%) | 1.1×10^2 (99.7%) | 6.9×10^{-1} (40.0%) |

注 ()内は各経路による被曝が占める百分率
被曝線量の単位はmrem/yr

を大きくとれる場合には、安全性はさらに大きくなることも考えられる。

環境因子がどのような値であれば地中処分場の立地条件が改善されるかについてはすでに定性的に検討した。しかしながら、一般的にこれらの環境因子間には複雑な関数関係があり、1つの因子のみが独立に変化することは考えられず、しかもそれらの因子の変化の向きは一致しない。例えば、地中処分場の立地条件としては、地下流速(v)は小さく、地層の空隙率(f)は小さいことが望ましい。(表-4.11参照)。しかしながら、地下水流量が一定であれば、空隙率が小さいとき地下水流速は大きくなり、2つの好条件を同時に満たすことはできなくなる。ところで、これら環境因子の変域および被曝線量に対する感度はおのおの異なる。例えば、地層の空隙率はほぼ25~50%の範囲で変化し⁽⁵⁸⁾、一方、地下水流速はほぼ0~120 cm/dayの範囲で変化する実測例等が報告されている。⁽⁵⁹⁾この場合に、これらの環境因子が変化することによって変化すると期待される被曝線量の変化率は次のようになる。

$$\text{空隙率: } \frac{\partial \ln D_s}{\partial \ln f} \partial \ln f =$$

$$(1.97 \times 10) \frac{0.4 - 0.25}{0.4}$$

$$= 7.39$$

$$\text{地下水流速: } \frac{\partial \ln D_s}{\partial \ln v} \partial \ln v = (5.61)$$

$$\times \frac{120 - 30}{30} = 16.83$$

したがって、一般的には地下水流速が小さいという条件を優先させることが望ましいとの結論を得る。ただし、各変数の変化の割合が等しい場合には表-4.10の感度の絶対値が大きい因子の条件を優先させればよい。他の環境因子について

表 - 4.14 地中処分場として望ましい立地条件

これらの立地条件は、番号の若い順に優先されるべきである。

A. 地理的条件

1. 処分場から灌漑用地下水採取井戸までの距離が大きい。
2. 処分場から飲料用地下水採取井戸までの距離が大きい。
3. 公共水域(海, 湖, 川等)までの距離が大きい。
4. 地下水位が深い。

B. 物理化学的条件

1. 地下水の流速が小さい。
2. 放射性核種の分配係数値が大きい。
(地下水中の陽イオン濃度が小さい)
3. 地層の空隙率が小さい。
4. 帯水層の厚さが大きい。
5. 土壌の密度が大きい。

C. その他の条件

1. 降雨量が少ない。
2. 海での平均混合深さが大きい。

も同様の計算をし、地中処分場の立地条件を整理して表-4.14に示す。

表-4.14は、地中処分場として望ましい立地条件を優先順位の高い順に並べたものである。この優先順位は、地中処分場候補位置の各環境因子値が基準位置のそれに近い値をとる場合ほど信頼性が高い。明らかにこれらの順位は絶対的なものではないが、処分場選定のための一般的指針として重要な役割を果たすものと考えられる。

4.3.2 評価図表による立地条件の比較

(1) 評価図表の数学的基礎

基準状態 \boldsymbol{x}_0 から $\Delta\boldsymbol{x}$ だけ離れた状態 $\boldsymbol{x} = \boldsymbol{x}_0 + \Delta\boldsymbol{x}$ における内部被曝線量を次式で与える。

$$D_s(\boldsymbol{x}; \boldsymbol{P}) = D_{s,0} + \Delta D_s \quad \dots\dots\dots (4-26)$$

ただし、

$$\Delta D_s = D_s(\boldsymbol{x}; \boldsymbol{P}) - D_{s,0} \quad \dots\dots\dots (4-27)$$

状態 \boldsymbol{x} の要素を x_i ($x_{i0} + \Delta x_i$) とすれば、式(4-27)は近似的に、

$$\Delta D_s = \sum_i \{ D_s(x_i; \boldsymbol{P}) - D_{s0} \} \quad \dots\dots\dots (4-28)$$

となる。ここに $D_s(x_i; \boldsymbol{P})$ は、 \boldsymbol{x} の内 i 番目の要素 x_i のみが変化し、 x_i 以外のすべての変数が基準状態にあるときの内部被曝線量を表わす。式(4-28)の近似精度、誤差の補正等については付録2を参照されたい。式(4-28)より、要素 x_i の値に対応して $\{ D_s(x_i; \boldsymbol{P}) - D_{s0} \}$ を目盛った評価定規を要素の数だけ準備しておけば、任意の状態(位置) \boldsymbol{x} での内部被曝線量 $D_s(\boldsymbol{x}; \boldsymbol{P})$ が、評価定規から評価点数 $\{ D_s(x_i; \boldsymbol{P}) - D_{s0} \}$ を読みとることにより、式(4-26)、式(4-28)によって容易に推定できる。 $\Delta D_s \gtrless 0$ に応じて $D_s(\boldsymbol{x}; \boldsymbol{P}) \gtrless D_{s0}$ となるから、任意の状態(位置)での内部被曝線量に注目した、安全性が基準状態に優るか劣るかは ΔD_s の符号によって判断することができる。さらに式(4-26)を用いれば被曝線量の絶対値をも知ることができる。^{(60), (61)}

(2) 評価図表と使用例

上述の手順に従って作製した安全性の評価図表を図-4.3に示す。図-4.3の作製にあたっては、式(4-23)に含まれる18個の環境因子の内6個の因子については ΔD_s に与える影響が著しく小さいので、それらの因子に関する評価定規を省略した。これら6個の環境因子に対する評価点はその因子の値によらずゼロ、すなわち基準位置での評価点を与えるとよい。図-4.3の評価図表は12個の評価定規で構成されており、各評価定規は下側の目盛に環境因子値が上側の目盛にそれに対応する評価点 $\{ D_s(x_i; \boldsymbol{P}) - D_{s0} \}$ が与えられている。各環境因子の基準値に対応する評価点はゼロで、 $\partial D_s / \partial x_i > 0$ となる因子 x_i については、その値が基準値より大きい場合には評価点は正の値を、基準値より小さい場合には負の値をとる。逆に、 $\partial D_s / \partial x_i < 0$ となる因子 x_i については、その値が基準値より大きい場合には負の評価点をまた基準値より小さい場合には正の評価点をとる。評価図表を構成する評価定規の数、評価定規に目盛られる評価点数は常に一定ではなく、基準位置の選び方、想定する放射性核種の移行経路等によって変化する。図-4.3を作製するに際しては、基準位置として表

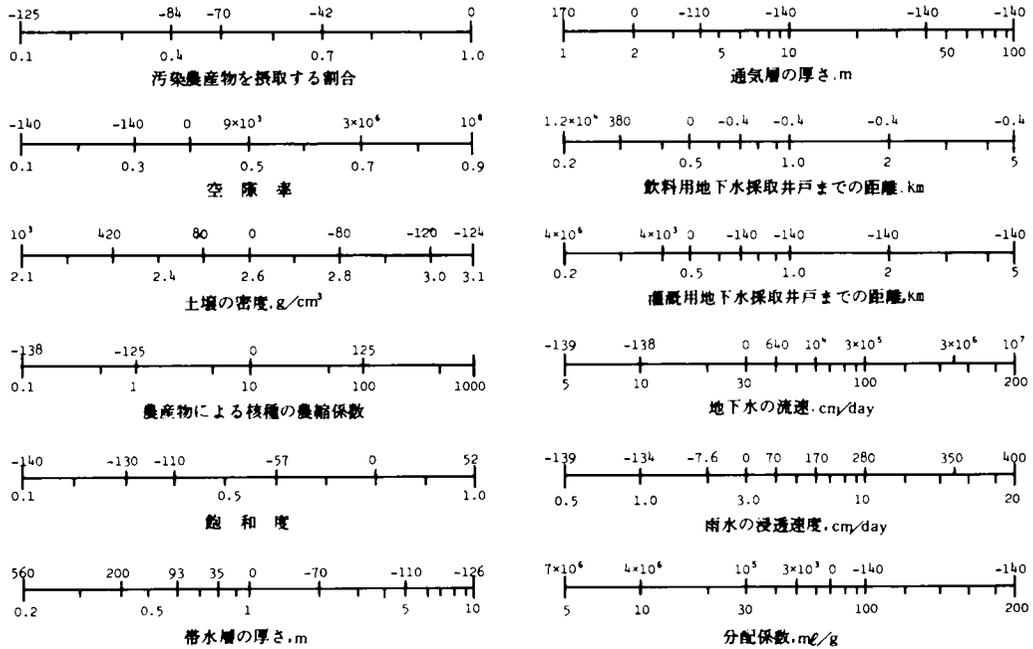


図-4.3 放射性廃棄物地中処分場の安全性を評価するための評価図表
(飲料水・農産物・水産物の経路を考慮：各環境因子の評価
点は上側の目盛で与えられる)

-4.9を採用している。評価図表，図-4.3に対応する内部被曝線量 Ds_0 は 1.4×10^2 mrem/yr である。

評価図表の使用例として次の地中処分場候補位置を想定する。すなわち， $H = 1$ m， $L_1 = 1$ km， $L_2 = 1$ km， $L_3 = 0.7$ km， $kd = 100$ ml/g， $CFp = 100$ で，その他の環境因子はすべて基準値（表-4.9参照）に等しいとする。この場合，各変数に与えられる評価点は図-4.3よりおのおの $170(H)$ ， $-0.4(L_1)$ ， $0(L_2)$ ， $-140(L_3)$ ， $-140(kd)$ ， $125(CFp)$ となり，これら以外の変数に対する評価点は全てゼロである。式(4-28)によりこれらの評価点数の和を計算すると $\Delta Ds = 14.6 > 0$ 。すなわち， $Ds > Ds_0$ 。つまり，地中処分場候補位置の安全性は基準位置の安全性に劣り，その推定内部被曝線量は近似的に式(4-26)より $Ds = 155$ mrem/yr となる。

評価図表は相対的な安全性を比較するのが目的であるから，その本来の目的は ΔDs の符号を知ることによって，あるいは ΔDs の大小関係を知ることによって達成できる。しかし，ここで提案した評価図表は，内部被曝線量の近似値を概算するためにも使用することができる。式(4-26)，式(4-28)を用いて，被曝線量 Ds を概算すると $Ds < 0$ となる場合がある。これは，各因子について厳密に計算した評価点 $\{ Ds(x_i; P) - Ds_0 \}$ の単純和が ΔDs であるとした式(4-28)が近似式であることに起因する。さらに近似精度をあげるためには式(4-28)の代りに次式(4-29)を用いればよい。

$$\Delta D_s = \sum_i \{ D_s(x_i; P) - D_{s0} \} + y \cdot A \cdot y^t \quad \dots\dots\dots (4-29)$$

ここに、 $y = (H-200, L_1-50000, L_3-50000, v-30, v_a-3, kd-70,$

$P_p-1, d-1, S-0.8, f-0.4, \rho-2.6, CF_p-10)$

y^t : ベクトル y の転置列ベクトル

A = 行列 ($f_{i,j}$)

ただし、 $f_{i,j}$ の値については付録2 参照

式(4-29)は図-4.3に対応して用いられる。それゆえ、異なる基準位置に対応する評価図表に対しては式(4-29)のベクトル y 、行列 A を改訂して用いる必要がある。式(4-28)は基礎式(4-23)に含まれる環境因子 x_i ($i = 1, 2, \dots, n$) が互いに独立であるとみなした場合の近似式に、また式(4-29)は環境因子 x_i の内任意の2因子間の相互影響のみを考慮した場合の近似式に相当する。両式は $\partial^2 D_s(x; P) / \partial x_i \cdot \partial x_j = 0$ が全ての i, j について成立する場合に、ほぼ一致する(付録2 参照)

(3) 評価図表の意義

評価図表を作製・準備することの第1の目的は、処分場の候補位置の大略の位置を定めたり、それらの位置の安全性の面からみた優劣を迅速に判定することにある。評価図表を構成する評価定規のおのおのに対応する環境因子は、図-4.3からもわかるように、いずれも直接に測定することが可能である。それ故、要求される安全性の評価精度に応じて各環境因子値を把握すればそれに応じて、例えば現地踏査の段階で、著しく安全性の劣る位置を棄却することが可能である。また、例えば本章第5節で行なう、地中処分場の最適立地位置の探索計算においては、計算のスタート位置を適切に定めたり、準最適位置の数を推定したりする場合にも利用することができる。

同じ目的で作製された評価図表にIAEAが提案したものがある。⁽⁴⁵⁾ IAEAが提案した評価図表は、まず第1にその理論的背景が明らかでない他、考慮すべき環境因子の数、因子に与えられる評価点数などに不満足な点がある。本節で提案した評価図表は、環境での核種の移動経路、評価点数の値とその誤差など作表の理論的背景が明確である点、線量の絶対評価が可能である点などでより優れていると考えられる。すでに述べたように、個々の環境要因に与えられる評価点数は、表現を変えれば各因子の被曝線量に対する感度の大きさによって定まり、評価点数の尺度は例えば式(4-25)のような感度の記述式によって定まる。しかしながら、すでに行なった検討から明らかなように、このような評価方法は、被曝線量に影響を及ぼす環境因子が互いに独立で被曝線量に対する感度がその因子のみの関数であり、かつ合理的な安全性評価のための基準状態が定まった場合にのみ有効である。

4.3.3 安全性の簡易評価法

地中処分場候補位置の優劣を判定するためには、候補位置ごとに基礎式(4-23)を計算すればよいが、候補位置ごとにその特性値を実測または推定して式(4-23)を計算することは良策といい難い場合がある。候補位置を視察することによって把握できる環境因子の値から、それに見合う精度で式(4-23)が計算できれば、候補位置間の優劣を判定する上で非常に便利である。この目的に、すでに提案した評価図表を適用することもできる。ここでは、それとは異なる被曝線量の近似計算法について検討する。

1) 近似計算法

内部被曝線量を推定するための基礎式(4-23)を一般に式(4-24)で記述し、各環境因子 x_i ($i = 1, 2, \dots, n$) の D_s に対する感度を式(4-25)で定義すれば、式(4-24)の1次近似式を次のように定めることができる。

$$D_s = D_{s0} + dD_s \quad \dots\dots\dots (4-30)$$

$$dD_s = D_{s0} \sum_i \frac{\partial \ln D_s}{\partial \ln x_i} d \ln x_i \quad \dots\dots\dots (4-31)$$

上式を用いて D_s を推定する場合の近似誤差は状態変数 \mathbf{x} のその基準位置における値 \mathbf{x}_0 からの変量が小さい程小さくなる。式(4-31)を適用する場合には、感度値 $\partial \ln D_s / \partial \ln x_i$ として、基準位置 (\mathbf{x}_0) の値を用いるか、候補位置 ($\mathbf{x} = \mathbf{x}_0 + d\mathbf{x}$) の値を用いるかによって、得られる D_s の近似値と、式(4-23)による厳密値との大小関係は変化する。両者の間には次の大小関係が成立する。

$$\frac{\partial D_s}{\partial \mathbf{x}} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_0) \geq 0 \text{ のとき}$$

$$\partial^2 D_s / \partial \mathbf{x}^2 \geq 0 \text{ であれば}$$

$$D_{s,ac}(\mathbf{x}) \geq D_{s,sc} \geq D_{s,ac}(\mathbf{x}_0) \geq D_{s,0}$$

$$\partial^2 D_s / \partial \mathbf{x}^2 \leq 0 \text{ であれば}$$

$$D_{s,ac}(\mathbf{x}_0) \geq D_{s,sc} \geq D_{s,ac}(\mathbf{x}) \geq D_{s,0}$$

$$\frac{\partial D_s}{\partial \mathbf{x}} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_0) \leq 0 \text{ のとき}$$

$$\partial^2 D_s / \partial \mathbf{x}^2 \geq 0 \text{ であれば}$$

$$D_{s0} \geq D_{s,ac}(\mathbf{x}) \geq D_{s,sc} \geq D_{s,ac}(\mathbf{x}_0)$$

$$\partial^2 D_s / \partial \mathbf{x}^2 \leq 0 \text{ であれば}$$

$$D_{s0} \geq D_{s,ac}(\mathbf{x}_0) \geq D_{s,sc} \geq D_{s,ac}(\mathbf{x})$$

ここに D_{s0} は基準位置での被曝線量、 $D_{s,sc}$ は式(4-23)の厳密計算によって得る候補地での被曝線量、 $D_{s,ac}(\mathbf{x}_0)$ 、 $D_{s,ac}(\mathbf{x})$ はおのおの基準位置、候補位置での感度値を用いて近似計算した候補位置での被曝線量である。添字 a,c は近似計算、 s,c は厳密計算であることを示す。

表-4.11、表-4.12 より、 $\partial^2 D_s / \partial \mathbf{x}^2 \geq 0$ 、 $\partial D_s / \partial \mathbf{x} \geq 0$ となる環境因子には、 v, q_0, f, Pd, Pp, Psf があり、 $\partial^2 D_s / \partial \mathbf{x}^2 \geq 0$ 、 $\partial D_s / \partial \mathbf{x} < 0$ となる因子には $H, L_1, L_2, L_3, kd, \theta, P, d, \rho$ があり、 $\partial^2 D_s / \partial \mathbf{x}^2 \leq 0$ 、 $\partial D_s / \partial \mathbf{x} \geq 0$ となる因子に S, v_a があり、 $\partial^2 D_s / \partial \mathbf{x}^2 \leq 0$ 、 $\partial D_s / \partial \mathbf{x} < 0$ となる因子はないことがわかる。したがって、 S, v_a 以外の因子については、基準位置での感度値を用いて計算した被曝線量の近似値 $D_{s,ac}(\mathbf{x}_0)$ は常に厳密計算値 $D_{s,sc}$ より小さく、因子 S, v_a については逆に大きくなる。この場合には、推算に用いる感度が表-4.10 で与えられる一定値をとるので計算が簡単である。一方、候補位置での感度を用いて計算した被曝線量の近似値 $D_{s,ac}(\mathbf{x})$ は、 S, v_a

以外の因子については常に厳密計算値 $D_{s,sc}$ より大きくなり、誤差は安全側に現われるが、因子 S, v_a については近似の誤差は危険側に現われる。

被曝線量の近似値と基準位置での被曝線量 D_{s0} との大小関係は、感度値の選び方によらず一定である。すなわち、いずれの近似計算を用いても基準位置より安全な（被曝線量の小さい）候補位置を危険と評価したり、逆に基準位置より危険な候補位置を安全であると評価する誤りは犯さない。被曝線量の厳密計算値と近似計算値との関係を図-4.4に、また、近似計算による推定誤差を L_3 に対してプロットしたものを図-4.5に示す。

(2) 安全性の評価

以上では、ただ1つの環境因子が変化する場合について検討した。実際には多くの因子が同時に変化するので、この場合についても近似値と厳密値との関係を明らかにしておくことと便利である。しかしながら、考えられるすべての場合について両計算値間の関係を明らかにしておくことは不可能に近く、そうすることの意義は実用的にはそれほど大きくない。そこで、両計算値間の関係ではなく、候補位置の近似値と基準位置の線量値との大小関係を、地中処分場の立地条件を検討したと同様の手法を用いて推定する。例えば、候補位置の環境因子が $L_1 = 550\text{m}$, $L_2 = 900\text{m}$, $L_3 = 450\text{m}$, $kd = 77\text{ml/g}$ であり、他はすべて基準値に等しい値をとるものとする。このとき、式(4-31)を計算すると、

$$dD_s = D_{s0} \left\{ \frac{\partial \ln D_s}{\partial \ln L_1} d \ln L_1 + \frac{\partial \ln D_s}{\partial \ln L_2} d \ln L_2 + \frac{\partial \ln D_s}{\partial \ln L_3} \times d \ln L_3 + \frac{\partial \ln D_s}{\partial \ln kd} d \ln kd \right\}$$

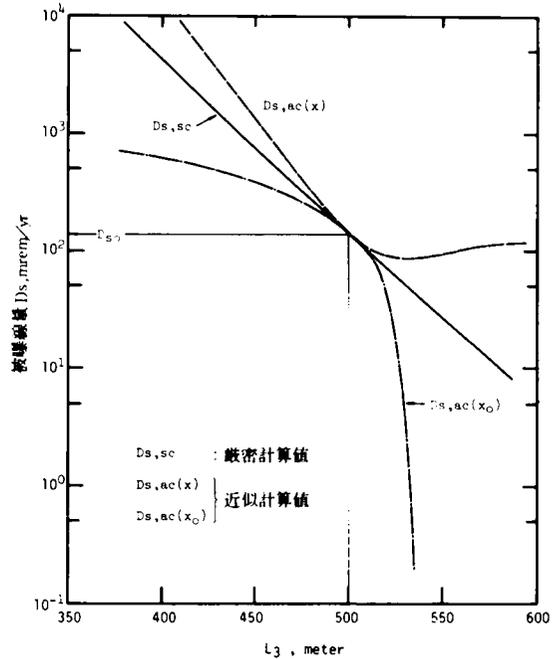


図-4.4 被曝線量の厳密計算値と近似推定値との関係

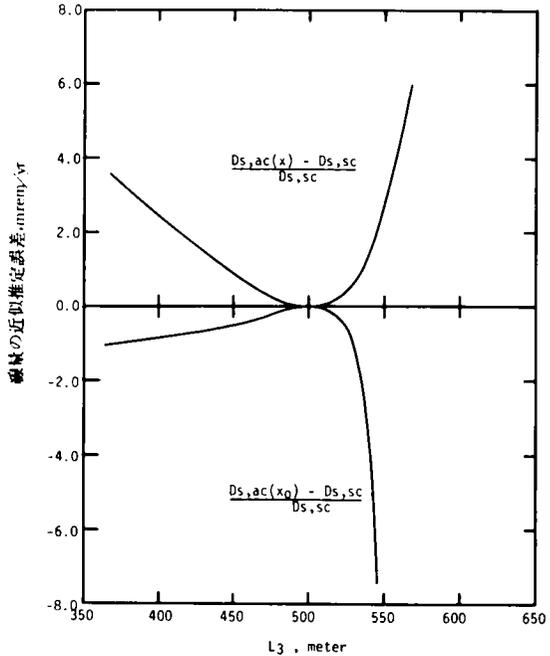


図-4.5 被曝線量の近似推定によって生じる誤差

$$\begin{aligned}
&= (1.4 \times 10^2) \left\{ (-5.29 \times 10^{-2}) \left(-\frac{550-500}{500} \right) + (0) \left(\frac{900-1,000}{1,000} \right) \right. \\
&\quad \left. + (-1.68 \times 10) \left(\frac{450-500}{500} \right) + (-1.08 \times 10) \left(\frac{77-70}{70} \right) \right\} \\
&= 8.33 \times 10 \text{ mrem/yr} > 0
\end{aligned}$$

となる。ただし、感度は基準位置の値（表-4.10）を用いた。故に式(4-30)より $D_s > D_{s0}$ ，すなわち、候補位置の安全性は基準位置の安全性に劣ることが推定できる。地中処分場の最適候補位置はこのようにして推定した。基準位置に対する相対的な安全度が最も優れた場所を選べばよい。このような手続きを図表を用いて実施しようとする着想が具体化した1例が評価図表である。ただし、数学的には式(4-31)は基礎式をTaylor展開し、その1次微分項までを用いる1次近似式であるのに対し、式(4-28)および式(4-29)では高次の微分項も採用されている。つまり、評価図表をここで提案した近似評価法と同じ安全性の近似評価法と考える場合には、両者の近似精度はおのずから異なることに注意する必要がある。

4.3.4 立地条件の工学的改善

本節では、廃棄物の保管場・地中処分場等が天然の状態のまま有している立地条件について検討した。ところが、これらの立地条件は工学的に改良することができる。この立地条件の工学的改良方法は、立地条件を導出するのに用いた環境因子あるいは核種の移行経路のおのおのにつき、いくつかを考えることができる。これらの方法について具体的に検討することは本論文の範囲を逸脱するのでここでは単にこれらの方法の内、すでに実用されているものおよび実用の可能性が大きなものを列挙するにとどめる。

放射性核種の環境中での移行経路を遮断または移行速度を低減させる工学的手段としては、例えば処分場の周囲に集水暗渠を設けて地下水を補集し、これを処理する方法⁽⁶²⁾、地下水の移動を阻止あるいは規制する止水壁⁽⁶³⁾や地中ダム⁽⁶⁴⁾、あるいは薬液を注入することによって地層の透水性を低くしたり⁽⁶⁵⁾、地表面近くに地下傘とよばれる不透水層を人工的に構築して雨水と廃棄物との接触を断つ方法⁽⁶⁶⁾等々がある。本章第6節で述べる立地要件設定の考え方を、核種の人体への移行を生態学的連関の最後の段階で遮断する方法であるとも考えることもできる。

一方、各環境因子に対する工学的方法の1例としてつぎのようなものを挙げることもできる。核種の地層への漏出率 q_0 に関しては、廃棄物を構造物中に保管・処分したり、セメント固化よりも核種の浸出率が小さなアスファルト固化・ガラス固化に変更する方法が、分配係数値 kd に関しては、薬液を注入して土壌が核種を保持・固定する能力を改善する方法⁽⁶⁷⁾が考えられる。

4.3.5 まとめ

本節では、放射性廃棄物地中処分場の立地条件について定量的に検討するとともに、廃棄物を処分することによって人が受けると考えられる内部被曝線量を近似的に推算する方法、および安全評価のための評価図表を提案した。本節の検討によって明らかになった事項を整理するとつぎのようになる。

(1) 放射性廃棄物を地中処分することによって受けると考えられる被曝線量に影響を及ぼす多くの環境因子の内、16個の因子について感度解析を行ない、地中処分場として好ましい立地条件を優先順位の高い順に整理して示した。従来提案されていた立地条件が定性的であったのに比べると、ここで提案した立地条件は定量的でかつその条件を導出する理論的背景が明確である。

(2) 地中処分場の立地条件は、設定する基準状態および個々の環境因子の値によって、その優先順位が変わることがある。環境因子が被曝線量の変化に及ぼす影響の大きさ、およびその変化の向き等を明らかにし、立地条件の優先順位の変化を推定する資料とした。

(3) 数箇所の地中処分場候補位置の立地条件を相互に比較する手段として、評価図表を提案した。この評価図表は作表の理論的背景が明らかであり、得られた評価点数は、候補位置に廃棄物を処分する場合に人が受けるであろう内部被曝線量との関係が明らかである。評価点数が正值の場合、候補位置の安全性は基準位置に劣り、2つの候補位置の間では評価点数の（正の）値が大きい位置の安全性が他方に比べて劣ることになる。

(4) 評価図表は複数個の地中処分場候補地の安全性を相対的に比較することを第1目的に作表されたものであるが、同図表を内部被曝線量を推定する近似法としても使用することができる。

(5) 放射性廃棄物を地中処分することによって受けると考えられる内部被曝線量を推定するための近似計算法を提案し、厳密計算法との関係（近似誤差の現われ方）を明らかにした。

(6) 環境因子の変化と被曝線量の変化との関係を明らかにすることを通じて、環境因子を4つの類型に区分し、各々の因子が線量推定の近似誤差に及ぼす影響を明らかにした。近似計算法を採用する場合に、想定した処分場の基準位置における感度値を用いれば、生じる近似誤差は因子 S, v_a を除き常に安全側に現われることを明らかにした。

4.4 既設原子力施設の安全性評価

第1章で紹介したように放射性廃棄物を地中処分する方法は現在世界で実用されている方法の内では、その処分規模・処分放射エネルギー等からみて最も主要な方法である。本節では、本章第2節で提案した安全性の評価法を用いて、我国および諸外国の放射性廃棄物の保管場・地中処分場の放射線学的安全性を、同じ条件の下で評価する。我国の廃棄物保管場の安全性と諸外国の地中処分場の安全性とを比較・検討することにより、我国において廃棄物の最終処分法として地中処分を採用することの可否を判断する資料とする。

4.4.1 調査対象施設および調査方法

我国の原子力施設の内調査の対象に選んだのは、原子力に関する諸研究所および建設中または建設準備中を含む原子力発電所等合計14施設の15地点である。これらの施設にはあらかじめ依頼状と調査票（付録3参照）を送付しておき、後日、同施設を訪問した折に調査票を回収すると共に、安全性評価に必要な諸項目について、担当者に面接・調査した。現在我国では、いずれの施設においても、廃棄物を直接に地中に処分する方法はとらず、保管施設において管理している。それ故、安全性の評価は廃棄物保管施設の立地場所または立地予定場所を対象にして実施した。同場所において試料土壌を採取し、密度・粒度分布等の物理特性値を測定すると同時に、陽イオン交換容量、原子力発電所から

排出される放射性核種についての分配係数値等の物理化学特性値を測定した。⁽⁶⁶⁾

第1章でも紹介したように、実際に放射性廃棄物を地中処分しその実績が豊富な国々の他にも、将来廃棄物の最終処分法の一つとして地中処分を採用することを検討している国、あるいは地中処分に関する基礎研究を積極的に進めている国は多い。これらの国あるいは研究施設に対し調査票（付録3参照）を送付し、回答を返送してもらったアンケート方式によって必要な資料を収集した。さらに、アンケートによって収集できなかった資料は公表された報告書・論文等によって補った。調査票を送付した施設は合計24ヶ国の26施設であり、この内有用な回答が寄せられたのは合計5ヶ国の5施設であった。⁽⁵³⁾

諸外国の廃棄物地中処分施設の内、特に豊富な経験を有するアメリカ合衆国およびカナダの施設は直接訪問し、調査票（付録3参照）に基づいて必要な資料を収集した。訪問した廃棄物の地中処分場はアメリカ合衆国9施設カナダ1施設である。アメリカ合衆国の9施設の内、5施設は原子力委員会所轄の研究所にある地中処分場、残り4施設は民間の廃棄物地中処分場である。^{(69),(70)}

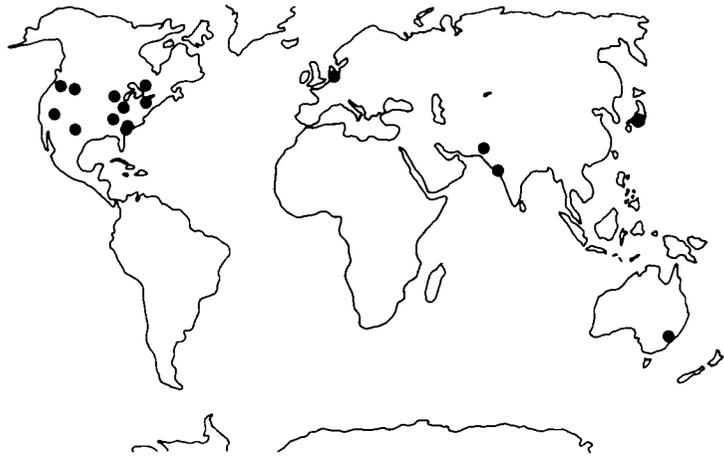


図-4.6 調査対象に選定した世界の廃棄物関連施設

本節で調査対象にした諸原子力施設の位置を図-4.6に示す。

4.4.2 評価の前提と方法

(1) 評価の前提条件

安全性の評価は単位量（1 Ci/yr）の ^{90}Sr が地中処分した固体廃棄物から地中に漏洩するものと仮定して推定した人間の内部被曝線量率の値の大きさに基づいて行なう。したがって特定の施設に放射性廃棄物を処分することによって受ける被曝線量率の大きさは、ここで得る線量率に廃棄物の処分量（厳密には放射性物質の漏出量）または処分可能量を乗じることによって得ることができる。廃棄物を地中処分する場合の安全性について考慮する場合、決定核種は ^{90}Sr であることが多いので、ここでは ^{90}Sr に注目することにする。もちろん土質条件等によっては、 ^{90}Sr 以外の核種が決定核種になることも考えられる。また、米国ロス・アラモス研究所のように ^{90}Sr の環境への放出量が他の核種に比べて極端に少ない場合には、他の核種、例えば同研究所では超ウラン元素が決定核種になると

* 1974年12月以降はエネルギー研究開発庁（ERDA：Energy Research and Development Administration）。

思われる。いづれにしても、ここで問題にしているのは、当該施設のもつ核種移動に対する阻止能力の大小であって、当該施設によってもたらされる現実の被曝線量の大小ではないから、比較の便宜を計り、1種類の放射性核種⁹⁰Srについて検討することにする。

地中に漏出した放射性物質が人間に摂取されるに至る経路として3経路、すなわち地下水を直接に飲用する経路、農産物の経路、海（水）産物を摂取する経路を考える（図-4.1参照）。地下水あるいは表面水の利用状態が把握できている場合を除き、地下水は一度表面水（河川水、湖沼水等）あるいは公共水域に達したら、その場で飲料水、灌漑用水として利用されるものとする。また、処分場の地下水は飲料用井戸、灌漑用井戸あるいは公共水域まで最短距離を経て移動するものとする。ただし、十分な調査によって地下水の流動状態が把握されている場合には、その調査結果に従って、地下水の移動経路長さを移動距離とする。

年蒸発量が年降雨量を上回る処分場では、地中に漏出した放射性物質が地下水面にまで到達するかどうかは疑問である。現にハンフォード施設では年間を通じて、地表面下6m以深の通気層では土壤水分の変動が認められないとのことである。しかし、現段階では地中に漏出した放射性物質が地下水面にまで移行することはないと断定することもできない。ここでは、地層の間隙が容量比で50%の水を含む場合（つまり地層の飽和度が50%の場合）に、地層間隙水は地下水面に向かって移動すると仮定して、通気層中での水分の移動速度を算出することにする。すなわち、水分の蒸発による鉛直上向きの水分移動の効果を無視する。つまり、年降雨量を τ (mm/yr)、地層の空隙率、飽和度を各々 $f(-)$ 、 $S(-)$ として、蒸発の効果を考えない場合、雨水の年間平均浸透速度 v_a (cm/day)を次式で算出することにする。ただし、通気層における雨水の浸透速度が実測されている

$$v_a = \frac{0.1}{365} \frac{\tau}{f(0.5-S)} \quad (\text{cm/day}) \quad \dots\dots\dots (4-32)$$

場合にはその数値を用いることにする。式(4-32)は乾燥地の現場容量すなわち土壤水分が重力の影響をうけて移動を開始する限界土壤水分量が飽和度に換算して50%である⁽⁷¹⁾との仮定に基づいて誘導されている。式(4-32)を用いて雨水の浸透速度を推定した処分場はアメリカ合衆国ビティ処分場である。サバンナ・リバー研究所では降雨のうち30%が地下水にまで到達することがわかっているので、有効降雨357 mm/yrを用いて、またケミ・ニュークリア・システム社バーンウエル処分場では1インチの降雨により雨水は0.95インチ地中を浸透するとのデータがあるのでこれを用いて浸透速度を推定した。ニュークリア・フューエル社ウエスト・バレー処分場では、我国の原子力施設の安全性を検討する場合と同じ仮定を採用して、浸透速度を地下水流速の1/10であるとした。他の処分場については実測浸透速度を用いた。

環境因子の値がある幅をもって与えられている場合には、安全側つまり、推定する内部被曝線量値が大きくなる側の数値を採用した。また環境因子についての情報が得られない場合には、我国の原子力施設の安全性を評価する際に用いる基準値（表-4.10参照）を用いた。地層の空隙率 f 、土壤の密度 ρ 、帯水層の厚さ d の基準値は各々0.40、2.65 g/cm³、1mである。

(2) 評価方法

放射性廃棄物の地中処分場および廃棄物保管場の安全性を評価するための指標として用いる内部被曝線量 D_s の評価式として式(4-23)を用いる。すでに述べたように、式(4-23)において、環境へ

の放射性核種⁹⁰Srの漏出率を単位規模(1Ci/yr)とするため、得られる線量率Dsは当該施設周辺の環境が天然の状態である放射線物質の移動を阻止する能力の大きさを表わす指標となる。ここでは、各施設についてDsを算出し、おのおの施設の相対的安全性を比較する。

地層への⁹⁰Srの漏出率1Ci/yrは、例えば、出力200万kWeのBWR型炉から発生する廃棄物20年分を全てセメント固化し、コンクリート・ピット中に保管するとし、事故率0.1%を想定した場合の⁹⁰Srの漏出率に相当する(表-4.3参照)。

4.4.3 原子力

表-4.15 我国の放射性廃棄物保管場周辺における食物の摂取

施設の特性
各施設の相対的安全性を評価するのに必要な環境因子値を整理して、我国の施設については表-4.15と表-4.16に、また外国の施設については表-4.17と表-4.18に示す。表-4.15および表-4.16に示した我国の廃棄物保

| 廃棄物保管場 | 国 | 降水量 mm/yr | 土壌の性質 | | | 摂取率 | | |
|--------|-------|--------------|--------------------------|-----------------|--------|--------------|--------------|--------------|
| | | | kd _{Sr} ml/g | C.E.C. μeq/g | 土壌類型 | 水産物 g/day | 農産物 g/day | 飲料水 l/day |
| A | Japan | | 12 | 11 | Sand | 300* | 1000* | 2.2* |
| B | Japan | 1300 | 30 | 242 | Silt | 300* | 1000* | 2.2* |
| C | Japan | 2500 | 40 | 56 | Clay | 300* | 1000* | 2.2* |
| D | Japan | 2000 | 65 | 70 | Sand | 300* | 1000* | 2.2* |
| E | Japan | 2100 | 700 | 168 | Clay | 300* | 1000* | 2.2* |
| F | Japan | 2490 | 45 | 48 | Silt | 300* | 1000* | 2.2* |
| G | Japan | | 12 | | Silt | 300* | 1000* | 2.2* |
| H | Japan | 2490 | 30 | 11 | Silt | 300* | 1000* | 2.2* |
| I | Japan | 1100 | 10 | 141 | Silt | 300* | 1000* | 2.2* |
| J | Japan | 2000 | 500 | 246 | Clay | 300* | 1000* | 2.2* |
| K | Japan | 1400 | 10 | 60 | Sand | 300* | 1000* | 2.2* |
| L | Japan | 1400 | 60 | 150 | Silt | 300* | 1000* | 2.2* |
| M | Japan | | 25 | 24 | Sand | 300* | 1000* | 2.2* |
| N | Japan | 1460 | 15 | 27 | Gravel | 300* | 1000* | 2.2* |
| O | Japan | 1415 | 150 | 123 | Sand | 300* | 1000* | 2.2* |

(注) *印は標準値を用いたことを意味する。
C.E.C. : 陽イオン交換容量

表-4.16 我国の放射性廃棄物保管場の特性

| 廃棄物保管場 | H m | L ₁ km | L ₂ km | L ₃ km | f - | s - | ρ g/cm ³ | d m | v cm/day | v _a cm/day |
|--------|--------|----------------------|----------------------|----------------------|--------|--------|------------------------|--------|---------------------|--------------------------|
| A | 15 | 1.0 | 0.15 | 1.0 | 0.32 | 0.80* | 2.65 | 10 | 24.2 | 2.42 |
| B | 4 | 1.5 | 0.5 | 0.2 | 0.46 | 0.80* | 1.68 | 45 | 77.7 | 7.77 |
| C | 7 | 1.0 | 0.15 | - | 0.37 | 0.80* | 2.46 | 1* | 104 | 10.4 |
| D | 30 | 1.0 | 1.1 | - | 0.29 | 0.80* | 2.51 | 1* | 1.7×10 ⁴ | 1.7×10 ³ |
| E | 3.5 | 0.6 | 1.0 | - | 0.48 | 0.80* | 2.17 | 1* | 1.3 | 0.13 |
| F | 5 | 0.8 | 1.2 | 0.8 | 0.40 | 0.80* | 2.52 | 1* | 346 | 34.6 |
| G | 6 | 0.75 | 0.25 | 0.75 | 0.33 | 0.80* | 2.65 | 19 | 259 | 25.9 |
| H | 3 | 0.6 | 0.5 | 0.6 | 0.45 | 0.80* | 2.67 | 1* | 8.6 | 0.86 |
| I | 20 | - | 0.72 | - | 0.36 | 0.80* | 2.26 | 5 | 86.4 | 8.64 |
| J | 5 | 1.0 | 0.3 | 0.3 | 0.54 | 0.80* | 2.14 | 1* | 6.1 | 0.61 |
| K | 5 | 0.55 | 0.3 | 0.3 | 0.40 | 0.80* | 2.54 | 1* | 124 | 12.4 |
| L | 5 | 0.55 | 0.45 | 0.21 | 0.47 | 0.80* | 2.28 | 1* | 7.8 | 0.78 |
| M | 2 | 0.35 | 0.2 | 0.16 | 0.25 | 0.80* | 2.49 | 1* | 82.1 | 0.82 |
| N | 5 | 1.3 | 0.2 | - | 0.20 | 0.80* | 2.95 | 1* | 5.7×10 ⁴ | 5.7×10 ³ |
| O | 2 | 2.0 | 0.03 | 0.75 | 0.38 | 0.80* | 2.49 | 1* | 1.7 | 0.17 |

(注) *印は標準値を用いたことを意味する。

表 - 4.17 諸外国の放射性廃棄物地中処分場周辺における食物の摂取

| 放射性廃棄物地中処分場 | 国名 | 降水量 mm/yr | 土壌の性質 | | 摂取率 | | | |
|-----------------------------|-----------|--------------|-------|-----------------|--------------|--------------|--------------|------|
| | | | ml/g | C.E.C. μeq/g | 水産物 g/day | 農産物 g/day | 飲料水 l/day | |
| Oak ridge National Labo. | U. S. A. | 139 | 80 | | Clay | 20 | 250 | 1.2 |
| Savannah River Labo. | U. S. A. | 1190 | 110 | | Silt | 30 | 1000* | 1.5 |
| Los Alamos Scientific Labo. | U. S. A. | 460 | 154 | | Tuff | 10 | 1000* | 3.0 |
| Idaho Falls N.R.T.S. | U. S. A. | 217 | 3 | | Sand | 300* | 1000* | 2.2* |
| Hanford Site 200 Area | U. S. A. | 150 | 20 | | Sand | 15 | 500 | 1.2 |
| 300 Area | | 150 | 20 | | Sand | 15 | 500 | 1.2 |
| KE & KW Area | | 159 | 43 | | Gravel | 15 | 500 | 1.2 |
| NFS West Valley Burial Site | U. S. A. | 102 | 30 | 100 | Silt | 300* | 1000* | 8.0 |
| CNS Barnwell Burial Site | U. S. A. | 1170 | 10 | 20 | Clay | 300* | 1000* | 2.2* |
| NECO Morehead Burial Site | U. S. A. | | | | Clay | 300* | 1000* | 2.2* |
| NECO Beatty Burial Site | U. S. A. | 127 | 297 | 20 | Silt | 300* | 1000* | 3.0 |
| NECO Sheffield Burial Site | U. S. A. | 833 | 150‡ | 150 | Clay | 300* | 1000* | 2.2* |
| Chalk River Nuclear Labo. | Canada | 730 | 25 | | Sand | 300* | 1000* | 2.2* |
| Stiching Reactor Centrum | Holland | 680 | 12‡ | | Sand | 300* | 1000* | 2.2* |
| Pakistan Institute | Pakistan | 950 | 150‡ | | Silt | 300* | 1000* | 2.2* |
| AAEC Res. Establ. | Australia | 1120 | 3 | | Clay | 300* | 1000* | 2.2* |
| Babha Atomic Res. Center | India | 2200 | 200 | 500 | Silt | 300* | 1000* | 2.2* |

(*) *印は標準値を用いたことを意味する。
 (‡) ‡印は推定値であることを意味する。

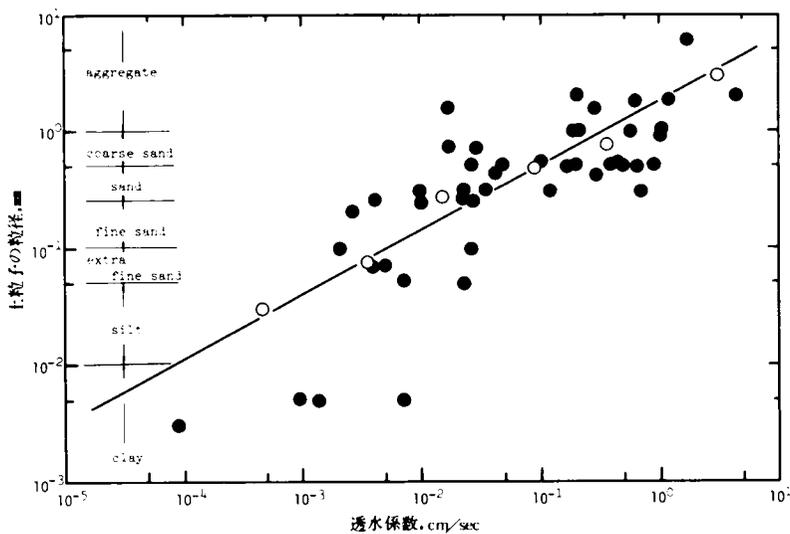


図 - 4.7 土壌の種類と透水係数との相関

管場の特性のうち、地層の空隙率 f および地下水の流速を推定する場合に用いる透水係数 k は、現場での実測値が得られた場合以外は、表 - 4.16 に示した試料土壌の物理的特性を図 - 4.7 および図 - 4.8 から決定した。図 - 4.7 および図 - 4.8 はすでに報告された種々の土壌に関する報告 (57), (58), (72) を整理して示したものである。また地下水の動水勾配は廃棄物保管場と地下水流出先と考えられ

表-4.18 諸外国の放射性廃棄物地中処分場の特性

| 環境因子 | H | L ₁ | L ₂ | L ₃ | f | s | ρ | d | v | v _a |
|-----------------------------|------|----------------|----------------|----------------|-------|-------|-------------------|-----|----------------------|----------------------|
| 廃棄物地中処分場 | m | km | km | km | - | - | g/cm ³ | m | cm/day | cm/day |
| Oak Ridge National Labo. | 2.0* | - | 0.15 | - | 0.40 | 0.50 | 3.0 | 1* | 90 | 280 |
| Savannah River Labo. | 12.0 | 2 | 2 | 2 | 0.35 | 0.25 | 2.0 | 30 | 3 | 0.11 |
| Los Alamos Scientific Labo. | 200 | 5 | 7 | 10 | 0.45 | 0.05 | 2.1 | 300 | 90 | 4 |
| Idaho Falls N.R.T.S. | 183 | 110 | 160 | 160 | 0.1 | 0.1 | 2.6 | 300 | 300 | 12 |
| Hanford Site | 100 | 20 | 15 | 15 | 0.33 | 0.15 | 2.7 | 100 | 140 | 0.03 |
| 300 Area | 18 | 9.5 | 6 | 6 | 0.33 | 0.33 | 2.65 | 33 | 450 | 0.03 |
| KE & KW Area | 22 | 15 | 0.4 | 15 | 0.20 | 0.33 | 2.40 | 70 | 500 | 0.03 |
| NFS West Valley Burial Site | 7.5 | 4.2 | 1.5 | 1.5 | 0.40* | 0.80* | 2.65* | 9 | 1.5×10 ⁻² | 1.5×10 ⁻³ |
| CNS Barnwell Burial Site | 15 | 0.6 | 25.1 | 25.1 | 0.40 | 0.48 | 2.7 | 9 | 0.58 | 0.26 |
| NECO Morehead Burial Site | 105 | 0.015 | - | - | 0.40* | 0.05 | 2.65* | 12 | 90 | 0.02 |
| NECO Beatty Burial Site | 15 | 0.32 | - | 0.32 | 0.40* | 0.80* | 2.65* | 1.8 | 1.5 | 0.15 |
| NECO Sheffield Burial Site | 6 | 1.1 | 1.1 | 1.1 | 0.36 | 0.80* | 2.67 | 4 | 15 | 0.15 |
| Chalk River Nuclear Labo. | 5 | 17 | 1 | 2.0 | 0.50 | 0.50 | 2.30 | 20 | 40 | 20 |
| Stiching Reactor Centrum | 100 | 4 | - | 15 | 0.40* | 0.80* | 2.65 | 1* | 154 | 15.4 |
| Pakistan Institute | 3.1 | 8 | - | 8 | 0.20 | 0.80* | 2.71 | 10 | 0.16 | 0.02 |
| AAEC Res. Establishment | 1 | - | 0.2 | 0.2 | 0.40* | 0.80* | 2.65* | 9 | 4.3 | 0.43 |
| Babha Atomic Res.Center | | | | | | | | | | |

(注) *印は標準値を用いたことを意味する。

る地点との標高差をその間の水平距離で除した値を用いた。また、特にアンケート調査によって資料を収集した諸外国の原子力施設のうち⁹⁰Srの分配係数値が不明の場合には土壌類型から陽イオン交換容量を推定し、図-3.7を用いて、⁹⁰Srの分配係数値を推定した。

評価対象施設が沿岸立地であるか、内陸立地であるかは、表-4.16および表-4.18中処分場から公共水域までの距離L₂の値によって判断することができる。ただし、施設が大きな河の近くに立地する場合はL₂の値によっては判断できないので注意する必要がある。我国の施設は全て沿岸立地、アメリカ合衆国およびカナダの施設は全て内陸立地である。

文献のみによって必要な資料を得た外国の施設はニュークレア・エンジニアリング社シェーフィールド処分場⁽⁷¹⁾ インドBhabha研究所^{(73),(74)} 訪問して得た資料を文献によって補った施設はニュークレア・エンジニアリング社ビィティ処分場^{(71),(75)} カナダ・チョーク・リバー研究所⁽¹⁷⁾ である。

我国の原子力施設およびオランダStichting 研究所では

まだ廃棄物は地中処分されていないことに注意する必要がある。ただ、現在でも廃棄物の保管と処分

との境界が厳密に定義されている訳ではない。例えば、フランスでは最終貯蔵と呼ばれている廃棄物管理法⁽⁷⁶⁾がインドでは処分と呼ばれている。⁽⁷³⁾

4.4.4 評価の結果

(1) 我国の廃棄物保管場の安全性

前述の評価および評価の前提条件に従い、表-4.15 および表-4.16 の環境因子を用いて推定した我国15箇所の廃棄物保管場の安全性を整理して表-4.19 に示す。

1 Ci/yr が地中に漏出することによって保管場周辺の人間が受ける可能性がある内部被曝線量の大きさ、あるいは保管場が天然の状態でも⁹⁰Srの移動を阻止する能力の小ささは表-4.19 より明らかなように場所によ

って大きく変動する。電気出力200万kWe規模の原子力発電所から発生する廃棄物20年分の全量をドラム罐中にセメント固化してコンクリート・ピット中に収納し、ドラム罐の破損率を0.1%とすれば、表-4.19 に与えた内部被曝線量は、⁹⁰Srの移動を阻止する能力ではなく、当該施設に廃棄物を保管することの安全性を表わす直接の指標となる。このような読み換えを行ない、仮に廃棄物の保管に割り当てられる被曝線量の増分を5mrem/

yr とすれば、廃棄物の保管が放射線学的安全性を確保する面から許されるであろう施設はA, E, J およびOの4施設であり、他の11施設についてはさらに詳しい評価を行なわねばならなくなる。ただし何らかの工学的処置を講じたり、適切な土地利用の管理を行なって地下水の利用を規制すれば廃棄物保管場の安全性はきわめて効率よく改善される(表-4.19 第5欄参照)。この場合にはB, C, D,

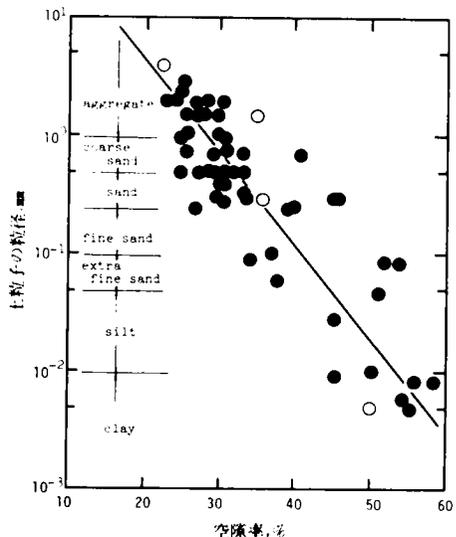


図-4.8 土壌の類型と地層の空隙率との相関

表-4.19 我国の放射性廃棄物保管場の安全性

| 施設名 | 内部被曝線量の推定値 mrem/yr | 影響が現われ始めるまでに要する時間 yr | 決定経路 | 地下水の利用を規制した場合の被曝線量推定値 mrem/yr |
|-----|-----------------------|-------------------------|------|----------------------------------|
| A | 1.7 | 9.2×10^2 | 農産物 | 2.2×10^{-1} |
| B | 7.5×10^6 | 5.3×10 | 農産物 | 8.6 |
| C | 1.2×10^2 | 4.8×10^2 | 飲料水 | 1.1×10 |
| D | 1.3×10^2 | 9.3 | 水産物 | 1.3×10^2 |
| E | 0 | 3.6×10^5 | - | 0 |
| F | 6.9×10^7 | 1.2×10^2 | 農産物 | 2.2 |
| G | 2.0×10^6 | 5.7×10 | 農産物 | 9.3×10 |
| H | 5.5×10 | 2.0×10^3 | 農産物 | 4.9×10^{-17} |
| I | 6.7 | 1.3×10^2 | 水産物 | 6.7 |
| J | 2.9×10^{-28} | 1.5×10^4 | 農産物 | 0 |
| K | 8.2×10^7 | 3.1×10 | 農産物 | 7.4×10 |
| L | 1.9×10^3 | 1.5×10^3 | 農産物 | 2.8×10^{-29} |
| M | 2.3×10^8 | 1.2×10^2 | 農産物 | 4.6 |
| N | 1.6×10^2 | 2.2×10^{-1} | 水産物 | 1.6×10^2 |
| O | 9.1×10^{-40} | 7.5×10^4 | 農産物 | 2.2×10^{-57} |

(注) 被曝線量が 10^{-70} mrem/yr 以下の場合はゼロと表示した。

G, I, KおよびNの7施設を除く8施設において廃棄物を保管できることになる。安全性を考える場合の決定経路は農産物摂取の経路となる場合が多く、 ^{90}Sr が人の生活環境に出現するのに要する時間も通常は数10年～数1000年となる。

(2) 諸外国の廃棄物地中処分場の安全性

表-4.17および表-4.18に示した資料を用い、前述の数学モデルによって推定した各施設の安全性を表-4.20に整理して示す。表-4.20は諸外国の各放射性廃棄物地中処分場の安全性が比較的大きいことを示している。

オークリッジ国立研究所の地中処分場の安全性、つまり推定被曝線量率 $1.7 \times 10^{-1} \text{mrem/yr}$ は、処分場付近の地下水が最終的に流入する

と考えられるクリンチ川の水産物を摂取する場合にうけると考えられる被曝線量である。処分場付近の地下水はまずホワイト・オーク・クリークへ集まるが、このホワイト・オーク・クリークの河川水を飲用すると、推定被曝線量は約170年後にはほぼ 90rem/yr になる。この数値は、諸環境因子値が安全側に評価されているとはいえ、かなり大きな値である。同研究所処分場の廃棄物トレンチからの浸出水中には約 $30,000 \text{dpm/ml}$ の ^{90}Sr が検出されたとの事実が紹介されているが、⁽⁶⁹⁾これらのことは同研究所においては放射性廃棄物の地中処分が細心の注意をもって実施されるべきであることを示している。

バーン・ウェル処分場では、処分場から約600m離れた位置で採取する地下水を飲用する経路が最も重要な経路（決定経路）になっている。また、カナダ、チョーク・リバー研究所では、オタワ川の河川水を灌漑用水として用いて栽培した農産物を摂取する経路が重要である。一方、オランダStichting研究所の廃棄物保管施設では敷地外の表面水を灌漑用水に用いて栽培した農産物を摂取する経路が決定経路になるものと思われる。

表-4.20 諸外国の放射性廃棄物地中処分場の安全性

| 放射性廃棄物の地中処分場 | 内部被曝線量の推定値 mrem/yr | 影響が現われ始めるまでに要する時間 yr | 決定経路 |
|-----------------------------|-----------------------|-------------------------|------|
| Oak Ridge National Labo. | 1.7×10^{-1} | 1.7×10^2 | 水産物 |
| Savannah River Labo. | 0 | 1.2×10^5 | — |
| Los Alamos Scientific Labo. | 0 | 1.2×10^5 | — |
| Idaho Falls N.R.T.S. | 0 | 1.3×10^4 | — |
| Hanford Site 200 Area | 0 | 6.7×10^5 | — |
| 300 Area | 0 | 2.5×10^5 | — |
| KE & KW Area | 0 | 1.2×10^6 | — |
| NFS West Valley Burial Site | 0 | 2.6×10^6 | — |
| CNS Barnwell Burial Site | 1.4×10^{-14} | 1.3×10^4 | 飲料水 |
| NECO Morehead Burial Site | 0 | 3.4×10^7 | — |
| NECO Beatty Burial Site | 0 | 5.6×10^4 | — |
| NECO Sheffield Burial Site | 0 | 2.6×10^3 | 農産物 |
| Chalk River Nuclear Labo. | 2.6×10^{-5} | 3.4×10^2 | 農産物 |
| Stiching Reactor Centrum | 3.8 | 7.6×10^3 | — |
| Pakistan Institute | 0 | 4.6×10^5 | — |
| AAEC Res. Establishment | 0 | 1.1×10^4 | — |
| Babha Atomic Res. Center | 0 | | |

(注) 推定被曝線量が 10^{-70}mrem/yr 以下の場合には0と表示した。

4.4.5 安全性の比較

表-4.19と表-4.20とを比較すると、我国の廃棄物保管場の安全性は諸外国の放射性廃棄物地中処分場に比べて低い傾向があることがわかる。その原因を、これらの施設の特性を表わす環境因子の値(表-4.15～表-4.18)を比較することにより検討すると、ほぼつぎのようにいえよう。まず第1に諸外国の施設の土地の広さを挙げることができる。土地を広く利用することができるために、処分場と飲料用地下水採取用井戸までの距離 L_1 、公共水域までの距離 L_2 、灌漑用地下水の採取井戸までの距離 L_3 等が我国の施設に比べると大きい。第2に、我国の施設に比べると外国の処分場では地下水位が深い。第3に諸外国、特に米国・カナダの地中処分場は一般に雨量が少ない。しかも、ニュークリア・エンジニアリング社ビティ処分場、ハンフォード施設等々では年降雨量よりも年蒸発量の方が大きい。このことは、放射性物質の輸送媒体である水の移動速度が遅いことを意味している。それ故処分場の安全性はより向上することになる。その他の環境因子の値は我国と諸外国とであまり大きな差異は認められない。

我国の廃棄物保管場のうちE、J、Oの各保管場の安全性は、米国・カナダの地中処分場の安全性に比較して劣ってはいない(表-4.20参照)。この原因は、これらの保管場では環境因子のうち特に分配係数値が大きく、しかも地下水の流速が小さいことである。このことは、仮に土地がせまく処分場から問題となる場所までの距離を長くとることができなくても、土地がせまいことの影響を他の環境因子で補いうることを示している。つまり、土地がせまいということは地中処分場の立地を棄却する絶対的な理由にはならない。勿論、土地がせまく、その影響を他の環境因子で補えない場合には処分場を立地させることはできない。

表-4.19をみると解るように、地中処分場の安全性は地下水の利用を規制することによって大幅に改善されている。このことは、地中処分場の管理を厳格にしたり、廃棄物の保管・処分に何らかの工学的防護処置を講ずることによって、安全性が大きく改善されうること示している。実際、放射性物質の地中への移行量 q_0 と被曝線量とはここで採用したモデルでは比例関係にあるから、廃棄物の固化材をコンクリートからピチューメンに変えることにより浸出率が 10^3 倍小さくなれば、地中処分場の安全性は 10^3 倍改善されることになる。結局、我国において放射性廃棄物を諸外国の廃棄物処分場と同程度の安全性のもとで処分するためには、安全性の向上に有利な環境因子値をもった処分場を探すと共に、何らかの工学的防護処置を講ずる必要があるといえる。

4.4.6 ま と め

我国の原子力施設敷地内に設けられた、あるいは設けられる予定の放射性廃棄物の管理保管施設、および米国・カナダの放射性廃棄物地中処分場を訪問するとともに、その他の国の廃棄物管理施設についてアンケート調査を実施して、各施設の環境特性値を把握した。アメリカ合衆国およびカナダでは、第1章で紹介したように、放射性廃棄物の管理方針は次第に厳格になりつつある。とりわけ、カナダ・チョーク・リバー研究所では極低レベルの放射性廃液を除く全ての廃棄物を保管廃棄するように管理方針を変更している。

現在、世界の各地で、放射性廃棄物が実際に地中に貯蔵あるいは処分されている。とりわけ、アメリカ合衆国においては、原子力発電所から発生する核分裂生成物を含む低レベル放射性固体廃棄物の

処分については、すでに解決済みの問題であるとされている観が強い。しかし、これらの事項は放射性廃棄物の最終処分の技術として、地中処分法が完成された技術であることを意味しない。それは、例えば 10^nCi/yr 以上の超ウラン元素を含む廃棄物を将来の技術革新を期待してとりあえず20年間、再びとり出すことができるような方法で工学的に貯蔵したり、高レベルの核分裂生成物廃棄物を西暦2000年を目標に工学的に貯蔵したりしようとする試み⁽⁷⁷⁾などから伺うことができる。

放射性廃棄物の地中処分場において、単位量 (1Ci/yr) の ^{90}Sr が地中に漏出すると仮定して、地中処分場の安全性を、処分の実施によって人が受けると思われる内部被曝線量の大きさを尺度にして評価した。同じ評価モデルを用いて、我国および諸外国の施設の安全性を評価し比較した。本節の検討によって明らかになった事項を整理するとつぎのようになる。

(1) 諸外国の放射性廃棄物地中処分場の安全性は、我国の廃棄物保管施設の安全性に比べると全体的により大きいと思われる。その主要な原因は、土地が広くしたがって処分場から問題となる場所までの距離を大きくとることができること、および、降雨量が少なく蒸発量が多くそれ故地下水位が深いこと、であると考えられる。その他の環境因子例えば土壌による放射性核種の分配係数値には大きな差異は認められない。

(2) 我国の廃棄物保管場の安全性は、施設の立地場所によって大きく変動する。条件の優れている施設の安全性は、例えばアメリカ合衆国・カナダの地中処分場の安全性と同程度であると推定された。このことは、我国においても適切な立地条件を備えた場所を探すことによって、諸外国と同程度の安全性の下に廃棄物を地中処分することが可能であることを意味する。

(3) 適切な工学的防護処置を構じたり、有効に処分場周辺の土地利用を管理することによって、廃棄物保管場の安全性を飛躍的に向上させることができる。

(4) 放射性廃棄物を地中処分することによって生じると考えられる潜在的内部被曝線量をもたらす放射性核種の決定経路は農産物摂取の経路となる可能性が大きい。

(5) 表-4.19 および表-4.20 からわかるように、廃棄物地中処分の影響が人の生活環境に現われ始めるようになるまでには極めて長時間を要する。廃棄物地中処分の技術は現在なお完成されたものではなく、今後の技術革新を期待できること等を考えると、我国において廃棄物を地中処分する可能性を放棄する根拠は薄いと考える。安易に地中処分法を採用することをつつしまねばならないのは勿論であるが、例えば、海洋処分法との比較・検討を充分に行なった後、慎重に採否を決定すべきであろう。

4.5 電算機による地中処分場の最適立地選定

十分な事前調査によって必要な資料が整っている原子力施設敷地内に放射性廃棄物の地中処分場または保管場を選定することとし、その最適位置を電算機を用いて探索する方法について検討する。計算は、地中処分場の立地を一般的立場から検討するために仮想の原子力施設敷地について行なった。同敷地を覆う正方形格子網の格子間隔50mは、わが国の原子力発電所で実施されているボーリング調査の密度、および地中処分場として必要と思われるスペース等から決定した。本章第1節および第4節で行なった安全性の評価では、地下水流速、地下水位、地層の空隙率、放射性核種の分配係数値等をいづれも一定値とみなし、敷地内での平均値ともいうべき値を用いていた。また、処分場から問題

となる地点までの距離も安全側を考慮して最短距離を用いていた。本節では、想定上の敷地であるという制約はあるものの、地下水流速等の環境因子が場所の関数として変化するとし、また処分場から問題となる場所までの距離を、実際に放射性核種が移動するであろう移動経路長さで評価する等の改良を行ない、現場の特性をより具体的に考慮することにした。^{(78),(79)}

4.5.1 評価の前提と評価方法

地中に処分した放射性廃棄物から漏出した放射性核種が再び人間に摂取される経路として図-4.1を想定する。すなわち、飲料水、農産物および海産物の経路がその他の経路に比べて重要であると考えるのであるが、前節までの検討とは異なって、処分場の安全性を比較する場合にこれらの3経路が常に併存するとは考えない。地中処分場候補地の地下水が敷地から直接海へ流出する場合には、海産物摂取の経路のみを考慮すればよく、川へ流出する場合には、河川水を飲料水・灌漑水として用いる場合に限って3経路について検討すればよい。また地下水が内陸部へ流入する場合には、常に3経路を評価の対象として選ぶ必要がある。

地中処分場の最適立地を検討する想定敷地を図-4.9に示す。敷地は南を海、西を川で区切られ、北および東で陸に接している。東西約1km、南北約0.5kmで面積は約54万㎡である。敷地内の地下水は後述するように、一様に海に向かって流れてはならず内陸部へ向う場合も、河川へ流出する場合もある。また敷地内には、地層の不連続面や岩石の裂け目に沿って地下水が流れる、いわゆる水筋は存在せず、地下水の流動状態は時間によって変化しないものとする。地中に処分された廃棄物によって生じる内部被曝線量は前節と同じく単位量(1 Ci/yr)の⁹⁰Srが地中に漏出する場合について評価する。地中処分場の最適性は試算された公衆の構成員に対する被曝線量の推定値が低い場所、すなわち被曝線量が最小の場所を地中処分場の最適地であると判断する。

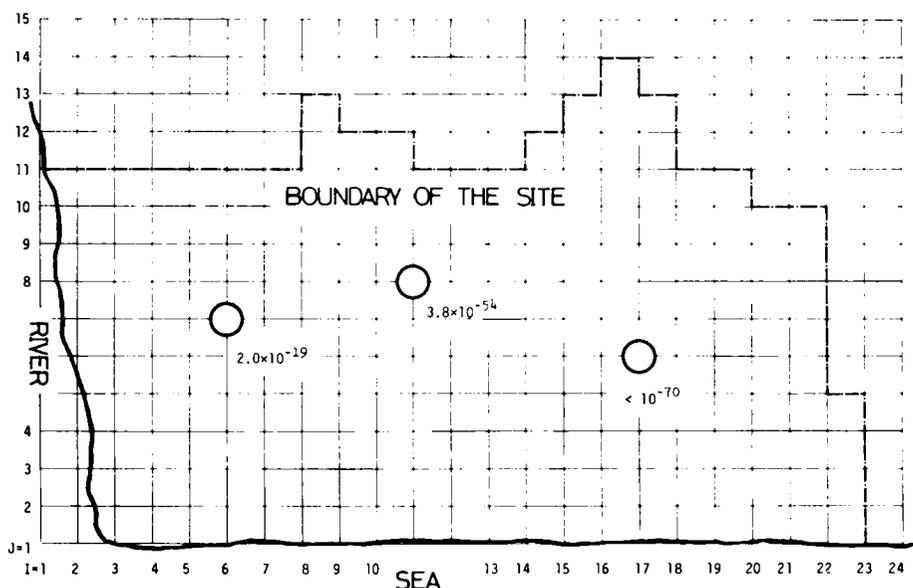


図-4.9 廃棄物処分場を立地させるために想定した原子力施設敷地

図-4.1の経路について、人の受ける潜在的内部被曝線量を評価する式として式(4-23)を用いる。式(4-23)の計算においては、飲料用地下水および灌漑用地下水の採取用の井戸は、原子力施設の敷地境界から30m以内には存在しないものと仮定する。したがって、敷地内地下水が内陸部へ流入する場合には、地中処分場候補位置から敷地境界までの地下水の流動経路長さに30mを加えて L_1 および L_3 の評価値とする。またこの地下水は敷地境界から、境界に沿って最長距離を通過して海へ流出するとして L_2 を評価する。敷地内地下水が直接に海へ流出する場合には地下水飲用の経路、農産物摂取の経路は考慮しなくてよいから、 $L_1 = L_3 = \infty$ とする。一方、敷地内地下水が直接に河川へ流出する場合には、河川水が河口で採取されて飲料水・灌漑水として利用されるものと考え、3つの経路のすべてを考慮する。ただし、河川内での ^{90}Sr の希釈・拡散効果を無視する。

4.5.2 最適立地場所の選定

(1) 想定した原子力施設の特徴

図-4.9に示すように、原子力施設の敷地を格子間隔が50mの正方形格子網で覆った。したがって、敷地内の任意の格子点座標(I, J)によって敷地内の任意の位置を代表させることができる。施設敷地内においては地中処分場を選定するために必要な諸資料が収集されており、おのおのの値が各格子点における値で代表されるものとする。図-4.10はこれらの格子点での地下水位を敷地前面海域の海水位を基準として与えたものである。図-4.10から得た敷地内地下水の等水位線図を図-4.11に、また地下水の速度分布を図-4.12に示す。格子点における地下水流速の計算にはDarcyの法則式(4-33)を用い、透水係数 k の推定にはKozenyの公式⁽⁵⁷⁾式(4-34)を用いた。

$$v = k \cdot \frac{\Delta h}{\Delta l} \quad (\text{cm/day}) \quad \dots\dots\dots (4-33)$$

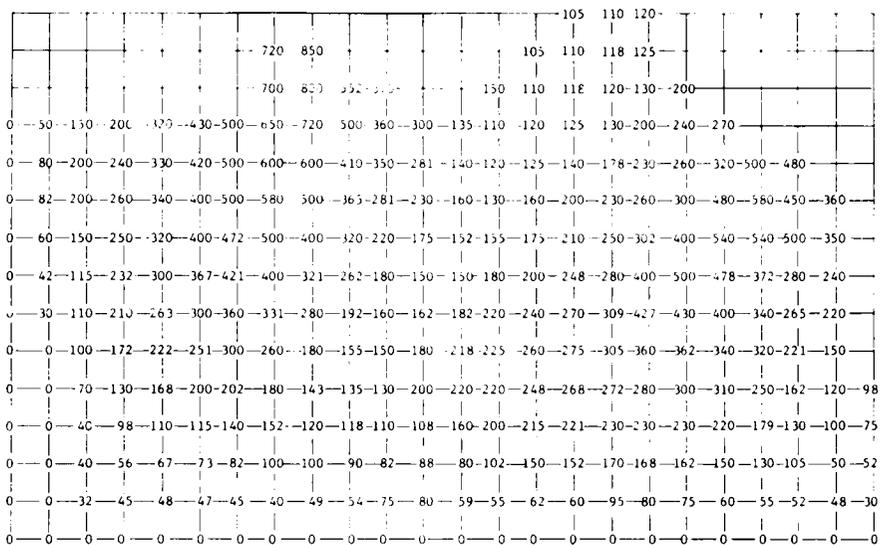


図-4.10 原子力施設敷地内の地下水位の分布
(数値は海拔の地下水位, cm, を示す)

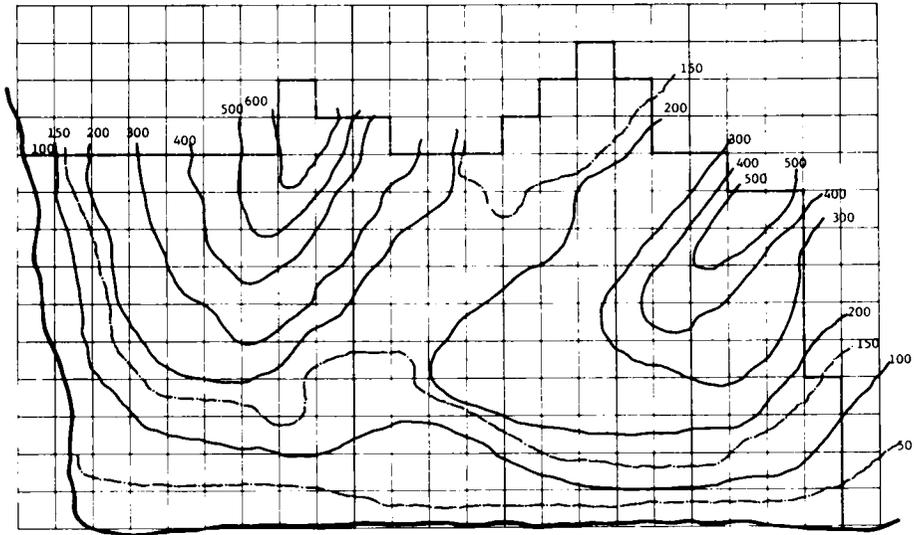


図-4.11 原子力施設敷地内の地下水等水位線図
(図中の数値は海拔の地下水水位, cm, を示す)

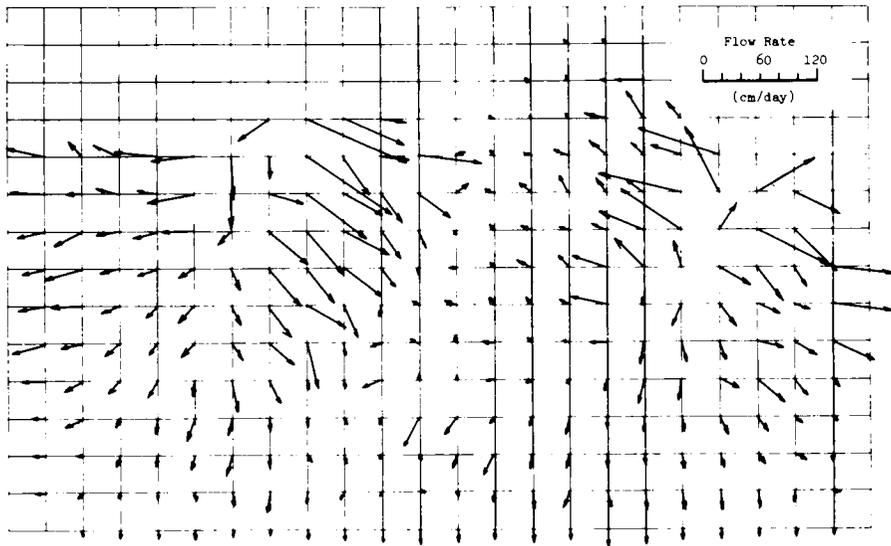


図-4.12 原子力施設敷地内の地下水の流向・流速分布

$$k = 9.2 \times 10^3 \cdot \frac{f^3}{(1-f)^2} \quad (\text{cm/day}) \quad \dots\dots\dots (4-34)$$

図-4.11 および図-4.12 より敷地内地下水の一部は直接に海へ、一部は川へ、さらに一部は内陸部へ流入することがわかる。さらに、式(4-23)を用いて被曝線量 D_s を推定するのに必要な環境因子の値を図-4.13 に示す。すなわち、同敷地内の土壌は海の影響を受けた区域、河川の影響を受けた区域、および山地部、平地部の特性を表わす区域からなり、各区域の環境因子が図-4.13 で与えら

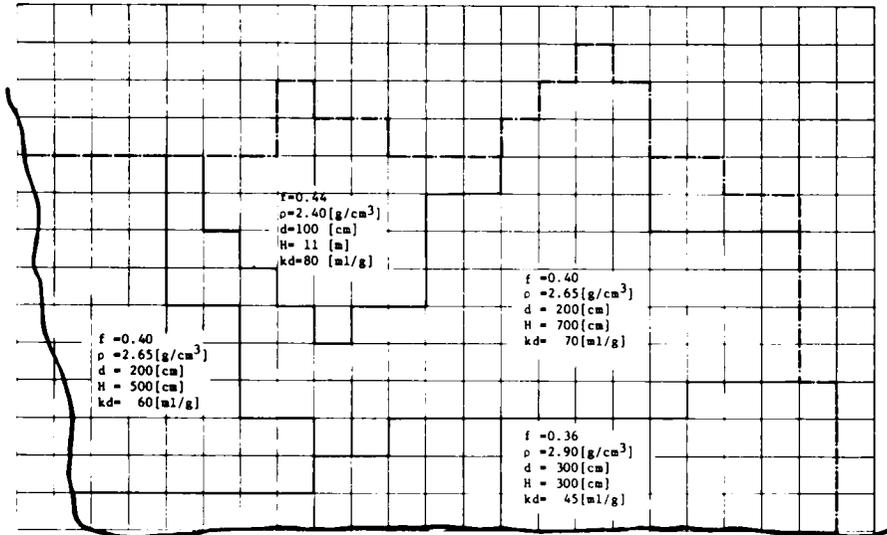


図-4.13 原子力施設敷地内の環境因子値の分布

れるものとする。上記以外の環境因子は場所によって変化しない定数と考えて表-4.9を用いる。

(2) 立地選定

地中処分場の最適位置を選定するための計算のフロー・チャートを図-4.14に示す。計算の実施にあたっては計算時間を節約するために、被曝線量を注目格子点とその上下左右の計5個の格子点について計算し、これらの格子点の被曝線量を比較し順次被曝線量の低い方向に格子点を移動させる方法を採用した。式(4-23)中に含まれる地下水流速の評価値 v は、地下水の流線長さをその経路に沿って地下水が移動するに要する時間で除した値を用いた。つまりこの地下水流速の評価値 v は、格子点毎に異なる地下水流速の流線上での平均値を表わしていることになる。格子間での流速はとなりあう2つの格子点における流速から線型補完して推定した。

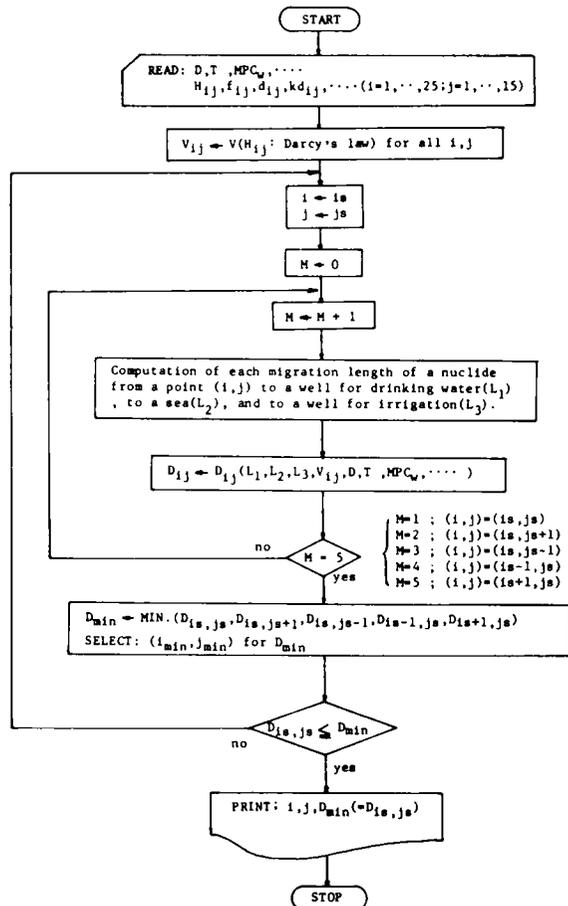


図-4.14 処分場の最適位置を選定するための計算フロー・チャート

図-4.15 は計算の出発格子点から処分場立地の最適格子点に至る計算順序を示したものである。

図-4.15 中○印は線量を評価した格子点を、◎印は5個の評価格子点の内、線量が最小になった格子点(線量極小格子点)を表わす。図は、(10, 5)→(10,6)→(11,6)→(11,7)→(11,8)の順に移動し、地中処分場として最適な位置に到達する様子を示している。明らかに、このような計算方式を採用すれば、敷地内に式(4-23)で与えられる被曝線量が極小になる格子点が複数個ある場合には、1回の計算では全ての線量極小格子点を得ることはできない。敷地内に線量極小格子点がいくつあるかを判定するための数学的に厳密な方法はない。ただし、地下水の等水位線図等を参照することにより、このような格子点がいくつあるかを推定することはできる。すべての線量極小格子点を探し出すのに要する計算回数は、線量極小格子点の数のたかだか2倍であると考えられる。また、計算に要する時間は、出発格子点の選び方によって大きく変化する。出発点を合理的に選ぶには、本章第3節で検討した地中処分場の立地条件を有効に参照することができる。計算の出発点を変化させて得たすべての線量極小格子点を図-4.9に示す。図中の格子点に付した数値は、当該格子点から1 Ci/yrの⁹⁰Srが地中に漏出した場合に人体が受けると考えられる内部被曝線量(mrem/yr)を表わす。図-4.9は敷地内に被曝線量が極小になる場所が3箇所、すなわち(6,7)、(11,8)、(17,6)あることを示している。この内、被曝線量が最小になる場所は(17,6)で、被曝線量 D_s は 1×10^{-70} mrem/yr以下、放射性物質の流出先は海で、流出に要する時間は 4.1×10^4 年、移動する経路長さは790 mである。この結果、敷地内に放射性廃棄物の地中処分場を選定する場合、処分した廃棄物から漏出する放射性物質によって受けると考えられる放射線の被曝線量を最小にするためには、上記3地点のうち(17,6)を選べばよいことになる。

線量極小格子点付近での⁹⁰Srの移動経路についてさらに詳しく検討する。図-4.16は、線量極小格子点(17,6)に放射性廃棄物を処分した場合に、どのような経路で⁹⁰Srが移動するかを計算し

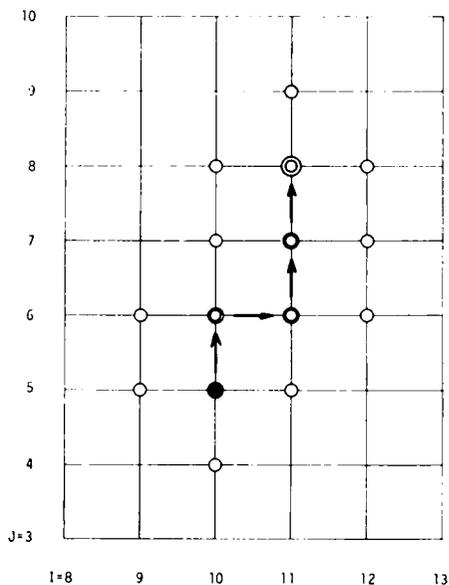


図-4.15 処分場最適立地位置の探索手順

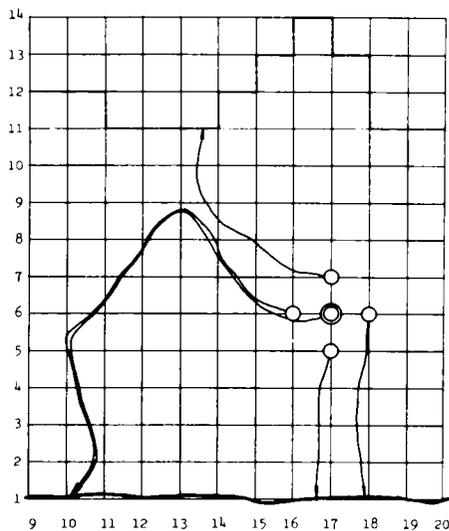


図-4.16 線量極小格子点(17,6)周辺での⁹⁰Srの移動経路

て図示したものである。格子点(17,7)を除き他の格子点の地下水はいづれも敷地の南の境界を経て海へ流出することを示している。各格子点での評価値を整理して表-4.21に示す。

表-4.21 格子点(17,6)周辺での相対的安全性(立地条件)の比較

| 位 置 | 内部被曝線量の推定値 mrem/yr | ⁹⁰ Sr の 移 動 | | |
|---------|-----------------------|------------------------|-------------------|-------------------|
| | | 移動方向 | 移動に要する時間 yr | 移動経路長* m |
| (17, 6) | $< 10^{-70}$ | 南(海) | 4.1×10^4 | 7.9×10^2 |
| (18, 6) | 1.4×10^{-13} | 南(海) | 2.4×10^2 | 2.5×10^2 |
| (17, 7) | 4.5×10^{-9} | 北(陸) | 1.1×10^3 | 4.2×10^2 |
| (16, 6) | $< 10^{-70}$ | 南(海) | 6.8×10^3 | 7.3×10^2 |
| (17, 5) | 9.3×10^{-14} | 南(海) | 2.5×10^2 | 2.0×10^2 |

*: 原子力施設敷地境界までの移動経路長さ。

4.5.3 考 察

放射性廃棄物地中処分場の最適立地場所を選定するために想

定した原子力施設を1辺50mの正方形格子網で覆い、適当な格子点から出発して、式(4-23)で定まる被曝線量が極小になる格子点を電子計算機を用いて求めた。放射性廃棄物を地中処分する場合にはコンクリート・ピットを構築したり、地下傘さらには地中ダム等の土木工事を施工して、廃棄物の処分環境を改善することもあるが、本節ではこれらの処置が放射性物質の地中への漏出量を少なくするための施策であるとし、これらの施設を用いる場合については検討しなかった。これらの工学的防護設備・構築物の効果を正確に評価するためにはなお多くの研究が必要である。しかしながら、式(4-23)からも容易に理解できるように、本章で用いる数学モデルにおいては、放射性核種の地中への漏出量 q_0 と内部被曝線量 Ds とは比例関係にある。したがって、これら構築物の効果を q_0 に反映させることができれば、本節で提示した手法によりその効果を評価できる。被曝線量は地中処分場の安全性を評価する上で重要な核種である⁹⁰Srが、1 Ci/yrの割合で地中に漏出する場合について計算した。上述のように⁹⁰Srの地中への漏出量 q_0 と被曝線量 Ds とは比例するので、⁹⁰Srの漏出量が100 Ci/yrであれば、被曝線量は得られた値の100倍になる。それ故、放射性廃棄物を地中処分することにより人体が受ける被曝線量の許容値が別の検討の結果として与えられれば、簡単な計算によって当該地中処分場で安全に地中処分できる廃棄物量を知ることができる。

原子力施設の敷地を4区域に分け、おのおのの区域について土壌の密度 ρ 、通気層の厚さ H 、帯水層の厚さ d および放射性核種の分配係数 kd を与えた。地下水位は敷地内の各格子点毎に与え、Darcyの法則によって地下水流速を計算した。さらに、地下水流速が格子点間では格子点からの距離に比例するとみなし、任意の処分場候補地から敷地境界に至る核種の移動経路と移動に要する時間とを計算した。この計算によって、人体に対する被曝線量を推定する場合に、図-4.1の3経路のすべてを常に考慮するという不合理を除くことができた。しかし、降雨時の地下水流量の増大、季節的な地下水位の変化等による地下水流況の変動および、格子間隔の粗密による計算精度等によって、放射性核種の移動パターン、ひいては人が受けると考えられる被曝線量を誤って推定する危険性、すなわち予測の信頼度を評価することはできなかった。これらの問題は地中処分場の立地選定を行なう場合の経済的問題、心理的社会的問題ともあわせて今後の研究課題である。

放射性廃棄物を地中処分することによって受けると考えられる内部被曝線量を推定する場合に必要な変数はすべて直接に実測することができる量である。したがって、放射性廃棄物の地中処分場を立地させる場合、あるいはその影響評価を行なう場合の評価精度は、どの程度の実測が技術的に可能で

あるかによって変わる。変数（環境因子）の値の変動域と、社会的・経済的・技術的に要求される測定精度、測定数、測定頻度等々を考慮して、状況に応じた実測の指針を設定する必要がある。

また計算精度を向上させるためには、例えば放射性核種の地中での移動経路を推定する場合に、格子間隔をさらに狭くする等の配慮が有効であるが、格子間隔の粗密は被曝線量を計算するのに必要な諸因子の値が持つ精度とのかねあいによって定めるべきである。

計算機を用いて、地中処分場として最適な位置を選ぶ本方法は、例えば、原子力発電所敷地内に放射性廃棄物の保管場、地中処分場を選定する場合に有効だけでなく、一般廃棄物・産業廃棄物等を処分する場所を選定したりする場合にも適用できる。

4.5.4 ま と め

本節の検討によって明らかになった事項を整理して示すとつぎのようになる。

(1) 想定上の原子力施設の敷地においては、種々の環境因子が場所によって変化する場合について、安全性を確保する立場から廃棄物の地中処分場を最適立地させる方法を提示し、その適用例を示した。本方法は廃棄物地中処分場の最適立地位置を選定するための有効な手法となる。

(2) 本節では、環境因子の値を場所の関数として与えた他、地中処分場の立地条件として重要である処分場から問題となる地点までの距離の評価値を、放射性核種が実際に地中を移動するであろう経路の長さで与えた。このような、より現実に近い状態で安全性を評価するためには計算機を導入することが有効である。

(3) 本節で示した処分場の最適立地位置の選定例では格子間距離を50mとした。この格子間距離は我国の多くの原子力発電所で実施されている地質調査用ボーリングの間隔の内、やや狭い側の値を考慮して定めた。この格子点間隔は計算精度を向上させる目的で、細かくしても全体としての有用性は必ずしも向上しない。収集すべき環境因子値の変動、立地させるべき処分場の面積等を考慮して設定すべきである。現状では、格子点間距離を小さくすることによる計算精度は、放射性核種の地中での移動経路長さを評価する場合に最も著しく改善されると思われる。

(4) 計算機を用いて、地中処分場として最適な位置を選定するための本方法は、原子力発電所敷地内に放射性廃棄物の保管場・地中処分場を立地させる場合に有効だけでなく、例えば地下水汚染による影響を最小にすることを目的として、一般廃棄物・産業廃棄物の埋立処分場を立地させる場合等に有効であると思われる。

4.6 地中処分場の立地要件

放射性廃棄物の保管廃棄場あるいは地中処分場を立地させる場合には、廃棄物に含まれる放射性物質が地中に漏出しても、周辺住民が著しい放射線障害をうけることがないように所定の広さの敷地を確保するべきであると考えられる。原子力発電所の立地に際してはすでに居住制限区域、居住禁止区域等の土地利用の制約が課せられており、こうした区域の設定方法についてもすでに一応の考え方が提示されている。⁽⁸⁰⁾ 特に廃棄物の地中処分場においては放射性核種の地中での移動速度が極めて遅いため、このような土地利用の制限区域を合理的に設定することによって潜在的な放射線障害の程度を著しく改善できることが試算によって示されている。⁽⁴³⁾ このような指摘が妥当であることは、例え

ば本章第3節および第4節の検討結果からも容易に推定することができる。

本研究では、放射性廃棄物の地中処分場を立地させる場合に、処分場周辺の住民が限度以上の放射線障害を受けないために必要な処分場敷地の広さについて検討し、処分場敷地の広さの決定方法、土地利用制限区域の決定方法について提案する。さらに、これらの土地利用の制限区域が処分場周辺の自然環境因子の変化によってどのように変化するかを明らかにする。放射性廃棄物を地中処分することによって生じる地圏・水圏環境の汚染により人体が受けるであろう放射線障害を、限度以下に維持するために廃棄物処分場が有すべき最小の敷地面積をここでは立地要件と呼ぶことにする^{(81),(82)}。

4.6.1 評価の前提

放射性廃棄物地中処分場で、処分された廃棄物から地中に漏出した放射性核種は通気層中を移動して地下水層に達する。さらに、放射性核種は地下水層内を移動して、ついには人の生活環境に出現すると考えられる。ここでは、人による放射性核種の摂取は、地下水の直接飲用の経路と、地下水を灌漑用水に用いて栽培した農産物を摂取することによる経路とが主であるとみなし、これら2つの経路による人体の内部被曝について検討する。地中処分された廃棄物からのスカイ・シャイン放射線および直接γ線による外部被曝についての検討は別の機会に譲る。

地中処分場の立地要件について検討するために想定した原子力施設の敷地を図-4.9に示す。図中の位置(6,7),(11,8),(17,6)は、それぞれ前節で述べたように、当該位置において放射性核種が地中に漏出した場合を想定し、計算によって推定した人体の内部被曝線量が極小になる位置(線量極小格子点)である。潜在的内部被曝線量の推定値は位置(17,6)が最小で、位置(11,8),(6,7)の順に大きくなる。ここでは、廃棄物の地中処分場(100 m×100 m, 面積1万m²とする)を位置(17,6)に立地させると仮定する。図-4.9の敷地について想定した地下水等水位線図を図-4.11に、環境因子値の分布を図-4.13に示す。本節では図-4.9の敷地を1辺が10mの正方形格子網で覆い、対応する位置の環境因子の値を格子点における値で代表させることにする。

4.6.2 立地要件設定の数学的基礎

(1) 基礎方程式

本節では、廃棄物地中処分場の立地要件を処分場周辺地下水の汚染程度に基づいて設定する。放射性核種の地下水中の濃度を記述する基礎式として、つぎの2次元非定常輸送拡散方程式を用いる。すなわち、

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{1-f}{f} \rho \frac{\partial q}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} (D_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (D_y \frac{\partial C}{\partial y}) - \frac{\partial}{\partial x} (v_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (v_y C) - \lambda \left\{ C + \frac{1-f}{f} \rho q \right\} \quad \dots (4-35)$$

一方、放射性核種の土壌との反応を記述する式としては次式を用いる。

$$q = kd \cdot C \quad \dots \dots \dots (4-36)$$

ここに、C,q：放射性核種の各々地下水、土壌中の濃度

- D_x, D_y : 各々地下水中での放射性核種の拡散係数
- v_x, v_y : 各々 x, y 方向の地下水流速
- λ : 放射性核種の崩壊定数
- ρ : 地下水層を構成する土壌の密度
- f : 地下水層の空隙率
- kd : 放射性核種の地下水と土壌との間の分配係数

本節では、地下水層の空隙率 f が一定であると仮定している* 他は、 $\rho, kd, v_x, v_y, D_x, D_y$ は各々位置 (x, y) の関数である。拡散係数 D_x, D_y は各々次式で与える。⁽⁸³⁾

$$\begin{cases} D_x = D_m |v_x| + D_d \\ D_y = D_m |v_y| + D_d \end{cases} \dots\dots\dots (4-37)$$

ここに、 D_m : 標準拡散係数
 D_d : 分子拡散係数 (定数)

式(4-36)を式(4-35)に代入し、さらに

$$\frac{t}{T} = K_f \equiv 1 + \frac{1-f}{f} \rho kd \dots\dots\dots (4-38)$$

なる変数変換を施すと、次式を得ることができる。

$$\frac{\partial C}{\partial T} = \frac{\partial}{\partial x} (D_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (D_y \frac{\partial C}{\partial y}) - \frac{\partial}{\partial x} (v_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (v_y C) - \lambda k_f C \dots (4-39)$$

本節では、地下水中の放射性核種濃度を推定する基礎式として上式を用いる。地下水中での核種濃度を推定するのに、一般的に式(4-39)を用いるには問題があるが、2次元輸送拡散方程式で地下水中の汚染物質濃度を推定できるような地層も存在することが確かめられている。⁽⁸⁴⁾

(2) 数値解法

基礎式(4-39)は解析的に解くことができない。ここでは式(4-39)をCrank-Nicolson型の差分で近似し、逐次過緩和法(S.O.R.)によって数值的に解くことにする。輸送項の差分については、設定した座標軸に対して流速が正である場合には後進型の、負である場合には前進型の差分を採用した。 v_x, v_y が共に正の場合の差分近似例を示す。

当該敷地を正方形格子網で覆い、位置 (x, y) を格子点 $(i, j) = (i \Delta x, j \Delta y)$ で表わす。格子点 (i, j) における時刻 n での地下水中核種濃度を $C_{i,j}^n$ とすると、時刻 $n+1$ での核種濃度 $C_{i,j}^{n+1}$ はつぎのように与えられる。

$$C_{i,j}^{n+1} = C_{i,j}^{n+1} + \omega E_{ij}$$

$$E_{ij} = \frac{1}{k+A} \{ (k-A) C_{i,j}^n + B(C_{i+1,j}^{n+1} + C_{i+1,j}^n) + D(C_{i-1,j}^{n+1} + C_{i-1,j}^n) \}$$

* 本節で行なう解析において不可欠な仮定ではない。他の環境因子と同じく場所の関数として変化させることができる。

$$+ F(C_{i,j-1}^{n+1} + C_{i,j-1}^n) + G(C_{i,j+1}^{n+1} + C_{i,j+1}^n) \} - C_{i,j}^{n+1}$$

ここに、 ω は緩和係数、 E_{ij} は格子点 (i,j) において濃度を逐次計算する場合の補正量である。 k, A, B, D, F, G は各々差分近似に関する係数で、格子点 (i,j) についてつぎのように与えられる。

$$k = (\Delta x)^2 / \Delta t = (\Delta y)^2 / \Delta t = (a)^2 / \Delta t$$

$$A = \frac{1}{2} \left\{ \alpha^2 \lambda K f + D_x \left(i + \frac{1}{2}, j \right) + D_x \left(i - \frac{1}{2}, j \right) + D_y \left(i, j + \frac{1}{2} \right) + D_y \left(i, j - \frac{1}{2} \right) + a v_x \left(i - \frac{1}{2}, j \right) + a v_y \left(i, j - \frac{1}{2} \right) \right\}$$

$$B = -\frac{1}{2} D_x \left(i + \frac{1}{2}, j \right)$$

$$D = -\frac{1}{2} D_x \left(i - \frac{1}{2}, j \right) + \frac{a}{2} v_x \left(i - \frac{1}{2}, j \right)$$

$$F = -\frac{1}{2} D_y \left(i, j - \frac{1}{2} \right) + \frac{a}{2} v_y \left(i, j - \frac{1}{2} \right)$$

$$G = -\frac{1}{2} D_y \left(i, j + \frac{1}{2} \right)$$

設定した正方形格子網の境界では、地下水中の放射性核種の濃度勾配が一定、すなわち $\partial^2 C / \partial x^2 = \partial^2 C / \partial y^2 = 0$ と仮定した。それ故、例えば設定した x 軸の右端境界格子点の核種濃度は次式で与えられる。

$$C_{i,j}^{n+1} = C_{i,j}^{n+1} + \omega E_{ij}$$

$$E_{ij} = 2(C_{i-1,j}^{n+1} + C_{i-1,j}^n) - C_{i-2,j}^{n+1} - C_{i-2,j}^n - C_{i,j}^{n+1} - C_{i,j}^n$$

核種濃度の初期条件は、処分開始時に処分場地下の地下水を除き、全ての場所での核種濃度はゼロとした。また地中に処分した放射性固体廃棄物からは放射性核種が定常的に一定速度で地下水へ漏出すると仮定し、処分場直下の地下水中の核種濃度は常に一定に保たれるものと想定した。

計算のフロー・チャートを図-4.17に示す。

(3) 数値計算

合計電気出力が200万kWeの原子力発電所の耐用年数を20年とし、同発電所から20年間に発生する放射性廃棄物の全量をセメント固化し、容器にいれずに1度に地中に埋設すると、廃棄物から地中へ移行する1年当りの放射性核種量は $2.17 \times 10^4 Ci$ 、その内 ^{90}Sr の占める放射エネルギーは $1.68 \times 10^3 Ci$ であると推算されている(表-4.3参照)。廃棄物をセメント固化して地中処分する場合には、地中処分の安全性を支配する決定核種が ^{90}Sr になる場合が多いから、ここでは地中へ移行する放射性核種の内、特に ^{90}Sr に注目して検討する。想定した廃棄物の埋設場(面積1万 m^2)において、廃棄物から地中へ移行する ^{90}Sr $1.68 \times 10^3 Ci/yr$ が埋設場直下の地下水層(厚さ1mとする)中で地下水によって一様に希釈され、しかもこの地下水 ^{90}Sr 濃度は一定に保たれるものと仮定する。この地下水

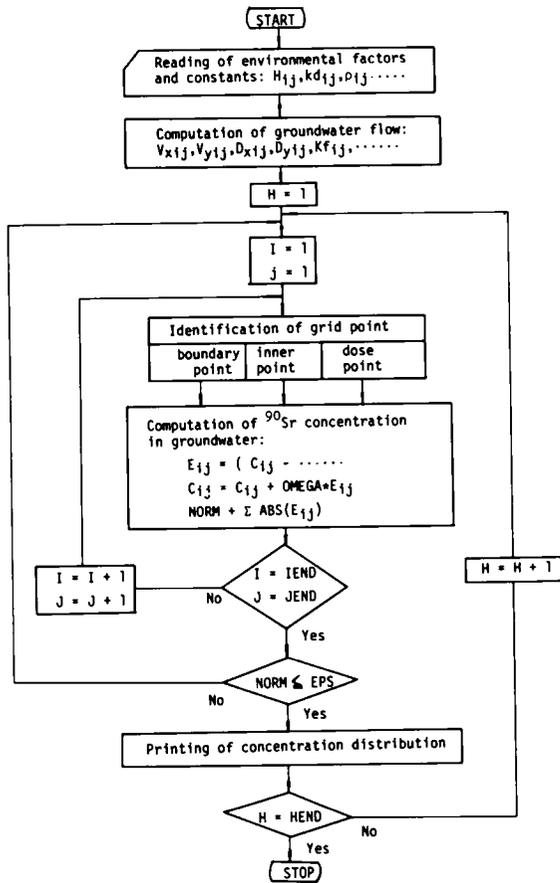


図-4.17 立地要件を設定するために用いる計算のフロー・チャート

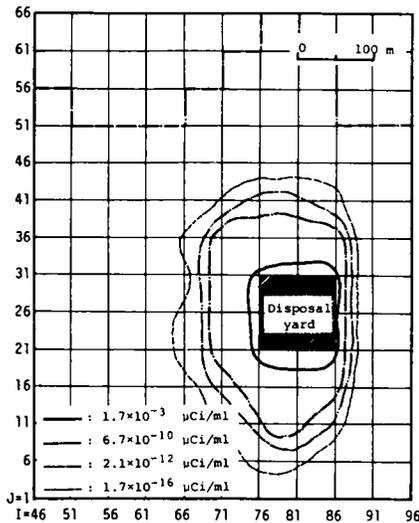


図-4.18 処分場周辺地下水中の⁹⁰Sr濃度の分布(10年後)

中⁹⁰Sr濃度は,

$$\frac{1.68 \times 10^3 C_i}{100\text{m} \times 100\text{m} \times 10\text{m}} = 1.68 \times 10^{-1} \quad (\mu\text{Ci}/\text{ml})$$

となる。

一方、図-4.13で設定した環境因子以外の、計算に用いた環境因子の値はつぎのとおりである。すなわち、標準拡散係数 $Dm = 1.0 \text{ cm}$ 、分子拡散係数 $Dd = 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 、地層の空隙率 $f = 0.40$ 、地層の透水係数 $k_s = 6.9 \times 10^{-2} \text{ cm}/\text{sec}$ 、⁹⁰Srの半減期 $t_{1/2} = 10^4$ 日、である。

時間ステップ幅を0.05日、空間ステップ幅を $\Delta x = \Delta y = 10\text{m}$ として、すでに述べた数値解法によって算出した⁹⁰Srの廃棄物埋設場周辺地下水中濃度分布を図-4.18および図-4.19に示す。図-4.18は10年後に期待され

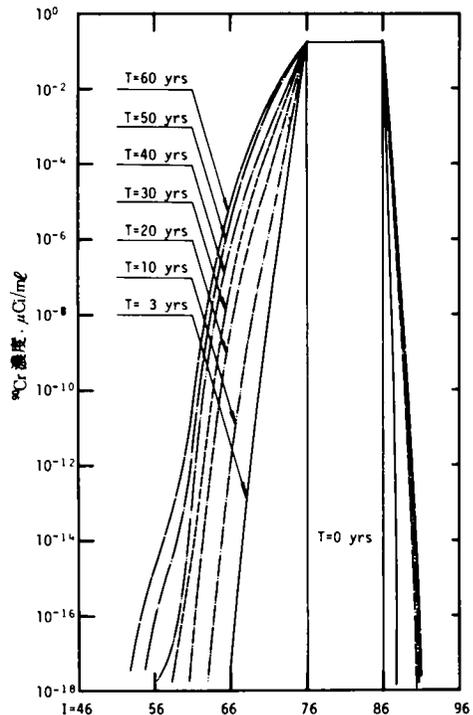


図-4.19 地下水中⁹⁰Sr濃度の経時変化(海岸線に平行な250m内陸側の値)

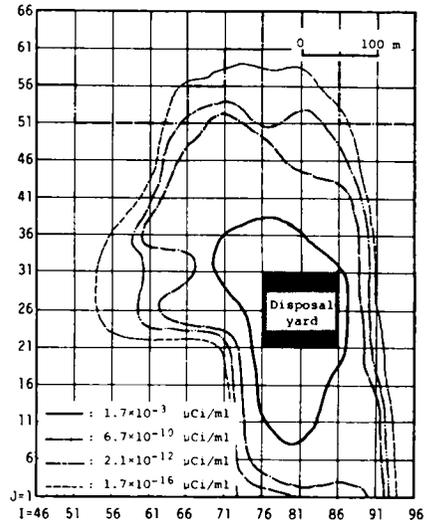
る⁹⁰Srの地下水中濃度分布を、また図-4.19は海岸から250m離れた格子線(J=26)上の⁹⁰Sr地下水中濃度の時間変化を凶示したものである。処分後時間の経過と共に増加する立地要件を整理して表-4.22に示す。

一方、基礎式(4-39)の右辺をゼロとおいて定常解析することによって得た⁹⁰Srの地下水中濃度の推定定常分布を凶-4.20に示す。

表-4.22 立地要件の経時変化

| 廃棄物処分後の経過時間 yr | 地下水の利用禁止区域 (×10 ⁴ m ²) | 地下水の利用* 規制区域 (×10 ⁴ m ²) |
|-------------------|--|---|
| 1 0 | 4.5 | 5.8 |
| 2 0 | 6.3 | 8.0 |
| 3 0 | 7.4 | 8.9 |
| 4 0 | 8.1 | 10.0 |
| 5 0 | 8.9 | 10.8 |
| 6 0 | 9.5 | 11.2 |
| 平衡状態 | 9.5 | 12.2 |

* 利用禁止区域の面積を含む。灌漑用水源としての地下水利用を規制する。



凶-4.20 処分場地下水中の⁹⁰Sr濃度の推定定常分布
(各環境因子が標準値をとる場合)

4.6.3 立地要件の設定と土地利用の制約

放射性核種を含む食物を摂取することによって、人体が受ける内部被曝線量は次式を用いて推定することができる。

地下水を飲用する場合

$$Ds = D \frac{IdC}{2200MPCw} \dots\dots\dots (4-40)$$

農産物を摂取する場合

$$Ds = D \frac{IpCFp kdC}{2200MPCw} \dots\dots\dots (4-41)$$

- ここに、
- Ds : 潜在的内部被曝線量の推定値
 - $MPCw$: 公衆の構成員に対する放射性核種の飲料水中最大許容濃度
 - D : 公衆の構成員に対する線量限度
 - Id, Ip : 各々飲料水、農産物の日摂取量
 - C : 放射性核種の地下水(灌漑水中濃度)
 - CFp : 農産物による放射性核種の濃縮係数
 - kd : 放射性核種の土壌への分配係数

本節では対象核種を⁹⁰Srに限っているから、式(4-40)、式(4-41)中の各変数の値は公衆の構成員に対して $MPCw = 4 \times 10^{-7} \mu Ci/ml$,⁽³⁸⁾ $D = 3 \text{ rem/yr}$,⁽⁵⁴⁾ $Id = 2,200 \text{ ml/day}$, $Ip = 1,000$

g/day , $CF_p = 10$, $^{(22)}kd = 70ml/g$ となる。地中処分場周辺での人体の内部被曝線量の限度値を公衆の構成員に対する線量限度の $1/100$ つまり 5 mrem/yr とすると、式(4-40)より地下水中の許容 ^{90}Sr 濃度は $6.7 \times 10^{-10} \mu\text{Ci/ml}$, 式(4-41)より農産物の灌漑用水として用いる地下水中の ^{90}Sr 許容濃度は $2.1 \times 10^{-12} \mu\text{Ci/ml}$ となる。

地下水および農産物を摂取することによって人体がうける潜在被曝線量を許容線量限度内にとどめるためには、図-4.18および図-4.20において期待される ^{90}Sr 地下水濃度分布のうち、 $6.7 \times 10^{-10} \mu\text{Ci/ml}$ 等濃度線以内の区域では地下水の飲用を禁止し、また $2.1 \times 10^{-12} \mu\text{Ci/ml}$ 等濃度線以内の区域では地下水を灌漑用水として利用することを禁止する必要がある。つまり、 $6.7 \times 10^{-10} \mu\text{Ci/ml}$ 等濃度線で囲まれる区域を地下水の利用禁止区域、 $6.7 \times 10^{-10} \mu\text{Ci/ml}$ 等濃度線と $2.1 \times 10^{-12} \mu\text{Ci/ml}$ 等濃度線とで囲まれる区域を地下水の利用規制区域として地下水を灌漑用水としてくみ上げることを規制することになる。地下水の利用規制区域の外側に、濃度推定の誤差、環境特性値の測定誤差、規制措置の徹底不備等による規制区域設定の誤差を補うために適切な濃度値を設定して、安全を保障するための緩衝区域を設定すればよいと思われる。この緩衝区域は、廃棄物埋設作業の開始後に行なうモニタリング・データーを用いて次第に狭くしていくことができるであろう。放射性廃棄物の埋設処分場は、この緩衝区域をも含めて地下水の利用規制区域全体をその内部に含むような敷地を確保すべきであると考えられる。

このような立地要件の設定には、将来にわたる安全性を現段階で確保しておくために、定常解析による ^{90}Sr 濃度分布の推定値を用いることにする。

4.6.4 立地要件の変更

前節で設定した廃棄物埋設場の立地要件は、 ^{90}Sr の分布を推定するモデルの種類、環境特性値の変動、測定誤差等種々の因子によって変化すると思われる。ここでは、立地要件の変化の原因となる諸因子の内、環境要因(特に、拡散係数、透水係数、分配係数、地層の空隙率)に注目して、立地要件がどのように変化するかを検討する。

(1) 拡散係数 D_m

現実の地下水層において拡散係数を測定した例は極めて稀である。河川・湖沼・海等での拡散係数の実測結果によると、その測定精度はほぼ 100% つまり、拡散係数の実測は係数のオーダーを定めるのが目的であるとされている。ここでは標準拡散係数 D_m が 1.0 cm の場合を標準例(図-4.20参照)として、 D_m が 10.0 cm 、 0.1 cm の場合について定常解析を行ない、得られた ^{90}Sr の地下水濃度分布を各々図-4.21、図-4.22に示す。図-4.20、図-4.21、図-4.22を比較すると ^{90}Sr の地下水濃度分布がほとんど変化しないことがわかる。このことは、立地要件の設定に際しては地下水の拡散係数の実測あるいは推定精度がオーダー推定を可能にする程度でよいことを意味している。

(2) 透水係数 k_s

地層の透水係数は、現場揚水試験等によって比較的、精度・信頼度共によく測定することができる。また、水位のデーターを用いて透水係数の面的分布を推定する方法も報告されている。⁽⁸⁵⁾ここでは k_s が $6.9 \times 10^{-2} \text{ cm/sec}$ の場合を標準例として、 k_s が $1.4 \times 10^{-1} \text{ cm/sec}$ 、 $3.5 \times 10^{-2} \text{ cm/sec}$ 、 $6.9 \times 10^{-3} \text{ cm/sec}$ の場合について定常解析した。透水係数が変化すれば地下水流速が変化するため

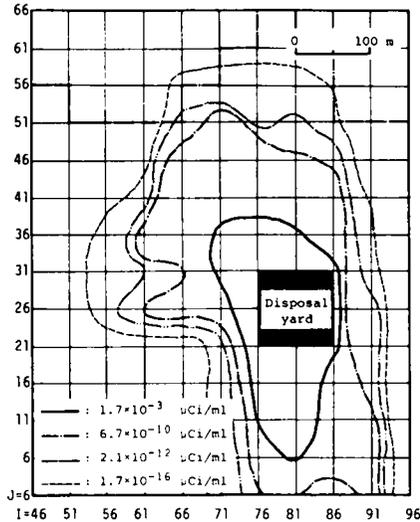


図-4.21 標準拡散係数 Dm が10倍 ($Dm=10$ cm) の場合の ^{90}Sr 濃度の定常分布

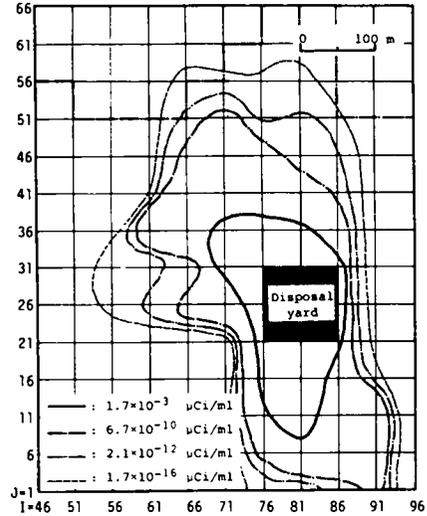


図-4.22 標準拡散係数 Dm が1/10倍 ($Dm=0.1$ cm) の場合の ^{90}Sr 濃度の定常分布

式(4-37)に従って拡散係数も変化する。地層の透水係数が各々の値をとる場合の地下水利用禁止区域、規制区域の面積を整理して表-4.23に示す。同表をみると透水係数が変化することによって処

表-4.23 環境因子が種々の値をとる場合の立地要件の変化

| 環境因子 | 地下水の利用禁止区域 ($\times 10^4 \text{ m}^2$) | 地下水の利用*規制区域 ($\times 10^4 \text{ m}^2$) |
|---|---|--|
| 標準状態** | 9.5 | 12.2 |
| $f = 0.3$ | 8.4 | 10.1 |
| $f = 0.5$ | 10.1 | 13.4 |
| $k_s = 6.9 \times 10^{-3} \text{ cm/sec}$ | 3.6 | 4.5 |
| $k_s = 3.5 \times 10^{-2} \text{ cm/sec}$ | 7.3 | 9.1 |
| $k_s = 1.4 \times 10^{-1} \text{ cm/sec}$ | 11.7 | 15.0 |
| $kd = (25, 30, 35, 40) \text{ ml/g}$ | 11.8 | 14.6 |
| $kd = (70, 90, 105, 120) \text{ ml/g}$ | 8.4 | 10.4 |

* 処分場と地下水利用禁止区域の面積を含む。

** 標準状態の値は以下の通り、 $f=0.4$ 、 $k_s=6.9 \times 10^{-2} \text{ cm/sec}$ 、 $kd=(45, 60, 70, 80) \text{ ml/g}$ 、(図-4.13参照)。

分場の立地要件がかなり変化することを示している。地下水の利用規制区域は透水係数の増加に伴って広がる。透水係数は比較的精度よく測定することができるから、立地要件の設定に際しては透水係数の測定箇所を増す等して、透水係数値の代表性・信頼性等を高めることが必要であると思われる。本研究では、便宜上全敷地にわたって透水係数は一定と仮定しているが、

透水係数が位置によって変化するとしても解析には支障がない。

(3) 分配係数 kd

放射性核種の分配係数値は地下水と土壌とを定めればほぼ一定値となり、あまり変化することはない。しかし、多量の廃棄物を埋設したりすれば、特にセメント固化体等を埋設すると地下水中の Ca^{+} Mg 等の共存イオン濃度が変化するため、分配係数値も変化する(第3章第2節参照)。ここでは図-4.13で与えた分配係数値を標準例として、分配係数値が1.5倍の場合と0.5倍の場合について定常解析した。各々の場合の立地要件を整理して表-4.23に示す。分配係数値が変化することによ

て、立地要件がかなり変化することがわかる。地下水の利用規制区域は分配係数値の増加に伴って狭くなる。

(4) 地層の空隙率 f

地下水層の空隙率を直接に実測することは非常に困難である。通常は透水係数を実測する場合の揚水試験によって得られる水位変化のデータから計算によって推定したり、あるいは空隙率を透水係数に加味させた有効透水係数を用いたりする。地層の透水係数はあまり広範囲には変動することがない。ここでは空隙率が0.40の場合を標準例として（図-4.20参照）空隙率が0.5，0.3の場合について定常解析した。立地要件を整理して表-4.23に示す。空隙率が大きくなる程地下水利用の規制区域も広くなることわかる。

ここで検討した以外の因子、例えば食習慣に関する因子、処分場周辺の人口分布に関する因子、さらに環境因子の内でも気候・天候に関する因子、水利・地質的因子等多くの因子によって処分場の立地要件は変るものと考えられる。しかしながら、処分場の位置を設定した後では、環境因子の内では上で検討した因子が特に大きな影響をもつものと考えられる。地下水の利用のために多量の地下水を汲みあげる場合には、井戸の設置位置が規制区域の外であっても、地下水の流線網そのものが変化するため、規制区域の設定が妥当であるかどうかを再検討する必要がある。本節では、廃棄物の地中処分場は、あらかじめ実施された安全性の検討において、放射性物質が漏出してでも安全性を確保する上で望ましいとされた位置に立地させられるとした。検討した条件下では環境因子がどのような値をとる場合でも、地下水の利用規制区域が敷地の外側にまで及ぶことがないように選定されていた。規制区域が敷地外側にまで及ぶ場合には、敷地面積を増加させる、処分場の立地位置を変更する、処分の方式を変更する、あるいは処分環境を人為的に改善する等の対策が必要になる。また、 ^{90}Sr 以外の核種が決定核種になる場合には、当該核種について同様の検討を実施する必要がある。

4.6.5 ま と め

地中処分した放射性廃棄物に由来する放射性物質によって受けると考えられる潜在的放射線障害が小さくなる位置に立地した想定した放射性廃棄物地中処分場を例に用いて、地下水中の ^{90}Sr 濃度分布に注目し、処分場の立地要件を定める考え方について検討した。本節の検討によって明らかになった事項を整理するとつぎのようになる。

(1) 本節で検討した方法によれば、実用に際しては尚設定した仮定等の吟味を深める必要はあるものの、放射性廃棄物地中処分場の立地要件、つまり放射線学的安全を確保する上に必要な処分場の必要面積を合理的に設定することができる。

(2) 放射性廃棄物の地中処分場を安全に立地させるためには、処分場の周囲に地下水の利用禁止区域、地下水の利用規制区域（地下水を灌漑用水として利用することの規制）および緩衝区域を設定しこれらの区域が処分場の敷地内に含まれるようにすることが望ましい。

(3) 放射性廃棄物地中処分場の立地要件は種々の条件によって変化する。本節で検討した環境因子については、透水係数が大きく、分配係数が小さく、地層の空隙率が大きい程、地中処分場の立地に必要な敷地面積は大きくなる。地下水の拡散係数の変化は立地要件の変化にあまり大きな影響を及ぼさない。

(4) 本節で設定した条件，処分場の立地場所等の下では，地下水利用の規制区域は，ほぼ敷地内に含まれている。地下水利用の規制区域が敷地内に含まれない場合には，敷地の拡張，工学的防護処置の施工等の対策が必要になる。

4.7 ま と め

本章では第2章および第3章で明らかになった放射性核種の地中移動特性および種々の条件下で実測した，核種の地中移動に関連の深い諸因子の値を用いて，放射性廃棄物の保管場・地中処分場の安全性について論じた。

まず，放射性廃棄物を地中処分することによって地中に漏出するであろう放射性核種の地中での移動，および最終的に人体に摂取されるに至る生態学的連関を定式化し，廃棄物地中処分場の安全性を評価する一方法を提案した。これらの評価に必要な種々のデータを得て，同評価方法を適用して安全性を評価した。試算の結果得られた結論の内主なものは次のとおりである。すなわち，廃棄物を地中処分する場合の安全性を考える上で重要な核種は ^{90}Sr と $^{110\text{m}}\text{Ag}$ とであり，最も重要な経路は農産物摂取の経路であること，および地中処分法は廃棄物の最終処分法として安全かつ有望であることである。

ついで第3節では，第2節で設定した安全性評価法を応用し，感度解析の手法により地中処分場の立地条件を定量的に明らかにした。さらに，これらの立地条件を相互比較する方法として評価図表およびその考え方の基礎を明らかにすると共に，地中処分場の安全性を比較する指標として用いる人体の内部被曝線量を推定するための簡便法を提案した。地中処分場の安全性を改善するための工学的防護措置については，現在すでに実用化の目途がたっているもの数種類を紹介するにとどめ，これらの措置によって地中処分場の安全性がどの程度改善されるかを評価することは他の機会に譲った。

第4節では，我国および諸外国の原子力施設設計27施設を調査対象にして，各施設のもつ相対的な安全性を同一基準によって評価・比較した。これらの施設では，放射性廃棄物の地中処分場，保管場あるいは保管庫の建設予定地等を評価対象に選んだ。評価結果は， ^{90}Sr が 1Ci/yr の割合で定常的に地中へ漏出する場合に，敷地周辺の住民がうける内部被曝線量を指標として表示したため，この評価値は廃棄物管理施設が天然の状態で有する，内部被曝線量を小さく維持する能力の大きさ（処分場の安全性）を表わしている。比較・検討の結果，我国においても諸外国の地中処分場と同程度の放射線学的安全性を確保しつつ，廃棄物を地中処分できるような場所を探しうることが明らかになった。

第5節では，適当な原子力施設を想定し，同敷地内に放射性廃棄物地中処分場の最適位置を選定する方法とその選定例とを示した。最適性の判断基準としては，推定される内部被曝線量が最小または極小であるとの基準を採用した。提案した立地選定法の適用例として，種々の環境因子値が場所によって変化する施設を想定し，同施設内に地中処分場を電算機を用いて立地させる問題を設定した。廃棄物から浸出した放射性核種が地中を移動する経路と移動に要する時間とを電算機によって推定するとともに，放射性核種の流出先に応じて，人体影響を評価するための核種の摂取経路を選択して，当該処分場候補位置の安全性を推定・比較した。本節で提案した処分場の立地選定法は放射性廃棄物の処分場を立地させる場合に有効であるだけでなく，一般廃棄物や産業廃棄物の処分場を立地させる場合にも応用できることを知った。

最後に第6節では、放射性廃棄物の地中処分場を最適立地させた後の、処分場の管理政策上必要と思われる立地要件について検討した。ここで、処分場の立地要件とは、廃棄物処分場を立地させることによって生じるであろう放射線障害を限度以下に維持するために必要な処分場の最低必要敷地面積をいう。本節では、放射性物質の地下水中の濃度分布を、非線型輸送拡散方程式を数値的に解くことによって推定し、廃棄物地中処分場の周囲に、地下水利用禁止区域、地下水利用規制区域および緩衝区域を設定すべきことを提案し、その設定例を示した。

本章の検討事項は、第2章第5節、第3章第6節同第7節と共に、本論文の主要部分を構成している。

参 考 文 献

- (1) Preston, A.: Aquatic monitoring programmes, Proc. Sem. Vienna, FAO/IAEA/WHO, SM-117/51, 309-324, (1969)
- (2) Dunster, H.J.: Environmental monitoring; British policy and procedures, Proc. Symp. New York, IAEA, SM-146/25, 427-437, (1971)
- (3) Neal, W.T.L.: A historical review of local monitoring for the contamination of land through disposal to the atmosphere, Proc. Sem. Vienna, FAO/IAEA/WHO, SM-117/52, 339-344, (1969)
- (4) Mitchell, N.T.: Monitoring of the aquatic environment of the United Kingdom and its application to hazard assessment, *ibid*, SM-117/20, 449-462, (1969)
- (5) Kamath, P.R.: Recent guide lines for developing environmental monitoring programmes near nuclear installation, *ibid*, SM-117/50, 295-308, (1969)
- (6) Honstead, J.F.: Mechanism of transfer of radionuclides to man in the vicinity of a nuclear facility, *ibid*, SM-117/92, 381-391, (1969)
- (7) 国際放射線防護委員会：放射性物質の取扱いに関連する環境モニタリングの諸原則, ICRP. Publ. 12, (1965), Pergamon press, 日本アイソトープ協会訳
- (8) Issacs, J.D.: Disposal of low-level radioactive waste into Pacific coastal waters, NAS/NRC Publ. 985, (1958)
- (9) Kaye, S.V. and Nelson, D.J.: Analysis of specific-activity concept as related to environmental concentration of radionuclides, Nuclear Safety, 9[1], 53-58, (1968)
- (10) Dyson, E.D.: A specific activity method for derived working limits of ^{32}P , Health Physics, 12, 1521-1526, (1966)
- (11) Kenny, A.W. and Mitchell, N.T.: United kingdom waste management policy, Proc. Symp. Vienna, IAEA, SM-137/62, 69-90, (1970)
- (12) 例えば, U.S.AEC: Environmental statement, waste management operations Hanford Reservations, Richland, Washington, WASH-1538, Draft (1974)
- (13) 原子力安全研究協会：放射能クリティカル径路調査, (1975)
- (14) 井上頼輝・森澤真輔：放射性廃棄物地中処分場の立地選定(1), 日本原子力学会誌, 14(10), 522~530, (1972)

- (15) Inoue, Y. and Morisawa, S.: On the selection of a ground disposal site for radioactive wastes; an approach to its safety evaluation, Health Physics, 26, 53-63, (1974)
- (16) Freke, A.M.: Some aspects of the public health hazard associated with the storage of disposal of glasses incorporating highly active F.P. wastes, *ibid*, 12, 1077-1086, (1966)
- (17) Merritt, W.F. and Mawson, C.A.: Experiences with ground disposal at Chalk River, Proc. Symp. Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/6, 79-93, (1967)
- (18) Merritt, W.F.: Permanent disposal by burial of highly radioactive wastes incorporated into glass, *ibid*, SM-93/29, 403-407, (1967)
- (19) Merritt, W.F. and Parsons, P.J.: The safe burrial of high-level fission product solutions incorporated into glass, Health Physics, 10, 655-664, (1964)
- (20) Dejonghe, P. et.al.: Asphalt conditioning and underground storage of concentrates of medium activity, Proc. 3rd Int. Cont. Geneva, Vol.14, 343-351, (1964)
- (21) 井上頼輝:総合解析の手法, 第2回放射医研環境セミナー報文集, NIRS-M-10, 86~87, (1975)
- (22) Menzel, R.G.: Soil-plant relationship of radioactive elements, Health Physics, 11[12], 1325-1332, (1965)
- (23) Fedrov, E.A. et.al.: Biological effects and behavior of radioactive fission product in the agriculture chains, Proc. of 4th U.N. Geneva Conf., (1971)
- (24) Cummings, S.L. et.al.: ^{137}Cs uptake by Oat plants as related to the soil fixing capacity, Health Physics, 17, 145-148, (1969)
- (25) IAEA and FAO: Isotopes and radiation in soil-plant relationships including forestry, Proc. of Vienna Symp., (1972)
- (26) 科学技術庁原子力局:放射性固体廃棄物処理処分検討会前処理技術分科会報告書(第一稿), (1971)
- (27) 日本原子力研究所:東海研究所における放射性廃棄物処理関係設備の概要, JAERI-memo 4049, (1969)
- (28) 寺島 泰:放射性廃棄物固化体中の放射性核種の溶出に関する研究, 保健物理, 6(3), 123~129, (1971)
- (29) Marter, W.L.: Ground waste disposal practices at Savannah River Plant, Proc. Sympo. Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/7, 95-107, (1967)

- (30) 石原藤次郎他：わが国における単位図の特性について，土木学会誌，41(3)，102～107，(1952)
- (31) 井上頼輝・森澤真輔：地下帯水層における放射性核種の挙動，土木学会第26回年次学術講演会講演集，Ⅰ-227，629～632，(1971)
- (32) 大阪府都市廃棄物処理対策研究会：廃棄物に関する調査研究報告，pp. 329，(1971)
- (33) 岩井重久・井上頼輝：原子力船による海洋の汚染について，水処理技術，4(9)，18～22，(1963)
- (34) 岩井重久・井上頼輝：海洋の汚濁物質受容限界について，土木学会第5回衛生工学研究討論会論文集，28～35，(1969)
- (35) 杉本昭典：海洋の汚染について，土木学会誌，55(9)，14～22，(1970)
- (36) 市川富士夫他訳：“放射化学の基礎”，(1968)，南江堂
- (37) 江藤秀雄他：“放射線の防護”，(1968)，丸善
- (38) ICRP：国際放射線防護委員会勧告，ICRP-Pub. 6，(1964)，アイソトープ協会訳
- (39) ENEA：西ヨーロッパにおける放射性廃棄物管理の実際，NSRA-memo 19，(1972)，原子力安全研究協会訳
- (40) 通商産業省編：昭和50年代のエネルギー，総合エネルギー調査会報告，(1975)
- (41) 土木学会学会誌編集委員会：資料・原子力発電，土木学会誌，57(2)，60～62，(1972)
- (42) 井上頼輝・森澤真輔：放射性廃棄物の地中処分問題，日本原子力学会誌，15(1)，3～15，(1973)
- (43) 井上頼輝・森澤真輔：放射性廃棄物地中処分場の立地選定(Ⅱ)，日本原子力学会誌，14(12)，652～660，(1972)
- (44) Morisawa, S. and Inoue, Y.: On the selection of a ground disposal site by sensitivity analysis, Health Physics, 26, 251-261, (1974)
- (45) IAEA: Radioactive waste disposal into the ground, IAEA Safety Series No.15, (1965)
- (46) 小林健三郎：わが国における原子力発電所適地の展望，土木学会誌，57(2)，5～12，(1972)
- (47) Reichert, S.O.: Geology plays an important role in radioactive waste management, Mining Engineering, September, 98-103, (1968)
- (48) Graf, P. and Rottenberg, W.: Plans for long-term storage of low- and medium-level radioactive wastes in Switzerland, Proc. Sympo. Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/23, 329-341, (1967)
- (49) Giannotti, G.P. et.al.: Selection criteria for ground disposal sites for solid radioactive waste in highly populated areas, *ibid*, SM-93/22, 319-328, (1967)

- (50) Preston, A.: Site evaluations and the discharge of aqueous radioactive wastes from civil nuclear power stations in England and Wales, Proc. Symp. Vienna, IAEA, SM-72/46, 725-737, (1966)
- (51) Gronouw, W.S.: Application of safety and siting policy to nuclear plans in the United Kingdom, Proc. Seminar, FAO/IAEA/WHO, SM-117/21, 549-559, (1969)
- (52) Mawson, C.A. et.al.: Canadian experiences with a national waste management facility, Proc. Symp. Aix-en-Provence, IAEA, SM-137/4, 183-194, (1970)
- (53) 原子力安全研究協会：放射性固体廃棄物処理処分専門委員会昭和48年度成果報告書，(1974)
- (54) ICRP：“体内放射線の許容線量”，ICRP-Pub.2, pp.23, (1959), 日本アイソトープ協会訳
- (55) Polikarpov, G.G.: "Radioecology of Aquatic Organisms", (1966), North-Holland Publ. Co.
- (56) NAS-NRC, USA: "Consideration on the Disposal of Radioactive Wastes from Nuclear Powered Ships into the Marine Environment", (1959)
- (57) 土木学会編：“水理公式集”，(1971), 技報堂
- (58) 酒井軍治郎：“地下水学”，(1965), 朝倉書店
- (59) 井上頼輝：日本原子力研究所大洗研究所における地下水の放射能汚染調査，京都大学工学部衛生工学教室，pp.12, (1967)
- (60) 井上頼輝・森澤真輔：放射性廃棄物地中処分場の立地選定(Ⅱ)，日本原子力学会誌，14(12), 652～660, (1972)
- (61) Morisawa, S. and Inoue, Y.: On the selection of a ground disposal site for radioactive wastes by means of a computer, Health Physics, 27[11], 447-457, (1974)
- (62) 日本環境衛生センター：廃棄物の埋立処分に関する技術の開発研究報告書，195～240, (1974)
- (63) 松尾新一郎・河野伊一郎：地下止水壁による地下水規制に関する実験的研究，土木学会論文集，No.178, 53～62, (1970)
- (64) 松尾新一郎・河野伊一郎：地下水規制のための地中ダムの構想，土木学会誌，53(3), 9～13, (1968)
- (65) 材料学会土質安定材料委員会：“薬液注入工法”，(1968), 鹿島出版
- (66) Hawkins, R.H. and Horton, J.H.: Bentonite as a protective cover for buried radioactive waste, Health Physics, 13, 287-292, (1967)
- (67) Baetsle, L.H. and Sonffriau, J.: Installation of chemical

- barrier in aquifers and their significance in
accidental contamination, Proc. Symp. Vienna,
IAEA/ENEA, SM-93/17, 229-239, (1967)
- (68) 原子力安全研究協会：固体廃棄物処理処分専門委員会昭和46年度成果報告書，(1972)
- (69) 原子力安全研究協会：固体廃棄物処理処分専門委員会昭和49年度成果報告書，(1975)
- (70) Inoue, Y. and Morisawa, S.: Survey on the relative safety of waste management sites in the world, Pre-publication copy, Dept. of Sanitary Eng., Kyoto Univ., (1975)
- (71) Morton, R.J.: Land burial of solid radioactive wastes: Study of commercial operations and facilities, WASH-1143, pp.95-96, (1968)
- (72) 川口桂三郎他：土壌学，(1965)，朝倉書店
- (73) Thomas, K.T. et.al.: Waste management at Trombay: Operational experience, Proc. Symp. Aix-en-Provence, IAEA, SM-137/38, 581-599, (1970)
- (74) Godge, V.B. et.al.: Characterization of Trombay soils for disposal of radioactive waste, Proc. Symp. Vienna, SM-93/21, 301-315, (1967)
- (75) Grove, D.B.: A method to describe the flow of radioactive ions in groundwater, SC-CR-70-6139, (1970)
- (76) Barbreau, A. et.al.: Experience industrielle de stockage de déchets radioactifs sur le site de La Hague, Proc. Symp. Aix-en-Provence, IAEA, SM-137/18, 485-501, (1970)
- (77) Szulinski, M.J. et.al.: Engineered storage of radioactive waste, HLW-55, ARH-SA-124, (1972)
- (78) 井上頼輝・森澤真輔：放射性廃棄物地中処分場の立地選定(Ⅱ)，日本原子力学会誌，15(2)，126～135，(1973)
- (79) Morisawa, S. and Inoue, Y.: On the selection of a ground disposal site for radioactive wastes by means of a computer, Health Physics, 27[11], 447-457, (1974)
- (80) 原子力委員会：原子が立地審査指針およびその適用に関する判断のめやすについて，38原委第99-(2)号，(1964)
- (81) 井上頼輝・森澤真輔：放射性廃棄物地中処分場の立地要件，日本原子力学会誌，18(5)，304～312，(1976)
- (82) Brown, D.J. et.al.: Land Requirements and waste-management policy at Hanford, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-137/48, pp.525-536, (1970)
- (83) Ahlstrom, S.W. et.al.: Methods for estimating transport

model parameters for regional groundwater system,
BNWL-1717, (1974)

- (84) 井上頼輝・森澤真輔・山口泰正：廃棄物の陸上埋立に起因する地下水汚染の現状と将来，
土木学会第11回衛生工学研究討論会講演論文集， pp. 47～52, (1975)
- (85) Nelson, R.W. and McCollum, W.L.: Transient energy dissipation methods of measuring permeability distributions in unconfined heterogeneous porous materials, Computer Sciences Co., U.S.A., (1972)

第 5 章 地中処分場周辺のモニタリング

5.1 概 説

放射性廃棄物地中処分の開始後および終了後には、安全を確認するためのモニタリングを実施する必要がある。このモニタリングの目的は①放射性核種の環境中での移行が事前調査および処分実施時の調査によって得られた資料に基づいて推定、予測した移行と適合しているかを確認すること、および②処分操作の誤りや環境の異常をチェックし、万一の事故や放射能レベルの長期的変動傾向を把握することである。モニタリングによって何らかの異常が検知されれば、その異常によってもたらされると思われる影響の上限値を推定し、必要な対策を講じることになる。モニタリングは公衆の構成員を限度以上の悪影響から防護することを最終目標にしている。それ故、モニタリングの実施に際しては、データの公表・評価・意見交換等を行なって公衆との良好な関係を維持しなければならない。⁽¹⁾

モニタリングは、単に環境の調査だけを内容にしているのではなく、調査結果の解釈と評価、必要な対策の設計と実施、モニタリング・システムの設計およびモニタリング・データをフィード・バックして行なうシステムの再構成等、どちらかといえば廃棄物処分体系の全体をその内容としている。ただし、当面の主要な作業目標は、環境中に放出された放射性核種が再び人間に摂取されるに至る経路を把握して、公衆の構成員および集団の被曝を明らかにすることである。この目標は経費にこだわることなく達成されねばならない。⁽²⁾

本章では、まず放射性物質による地下環境の汚染の特徴を整理し、そのモニタリングがどのように実施されているかを紹介する。ついで、放射性核種の移行を検知するために採用すべきモニタリング項目について検討する。最後に、放射性廃棄物地中処分場の周辺に配備すべきモニタリング網を設計する場合の基本的考え方を述べ、モニタリング網の配備例を示すことにする。すなわち、本章で行なう検討は、広いモニタリング体系の内の一部である環境調査法とそのシステムに関する検討に限られる。

環境モニタリングの考え方は原子力施設の安全性評価法と密接な関係を保ちつつ発展してきた。当初は、目にみえるあらゆるものをサンプリングし、分析してモニタリングの目的を達成していた。情報の集積に伴って、放射性核種の環境中での挙動が把握されるようになると、環境調査を重点的に再構成して、モニタリングは主要な核種（決定核種）が主要な移行経路（決定経路）を経て影響を及ぼす主要な集団（決定集団）を対象にして実施されるようになってきた。^{(1),(3),(4)} いわゆる、スクリーニング計画によるモニタリングから決定経路法に基づくモニタリングへと発展してきたといえる。⁽⁵⁾ モニタリング・データに基づいて同定された決定核種、決定経路、決定集団およびその影響の程度を整理して表-5.1に示す。表-5.1は、主として環境中に排出された放射性廃液によって、食物連鎖を経て公衆の構成員がうける内部被曝線量を評価した結果の一例を示している。放射性気体廃棄物の環境への排出に伴う被曝を推定するためのモニタリング体制は、液体廃棄物の場合よりもさらに進んでいる。我国においてもALAPの精神に基づいて、軽水炉原子力発電所から排出される気体廃棄物による人の被曝線量の低減目標値が全身線量 5 mrem/yr、甲状腺線量 15 mrem/yr に設定されて以来、原子力発電所周辺のモニタリング体制はさらにその精度を向上させることが要求されている。放射性

固体廃棄物の処分に伴う環境モニタリングは環境モニタリングの内では最も遅れている。特に、固体廃棄物の海洋処分に関するモニタリングは実施しても“意味がない”ので実施されないことになっている。地中処分の場合は“意味がある”モニタリングを実施することができるが、次節で述べる理由によって、地中処分場周辺のモニタリング網を設計することは、気体廃棄物や液体廃棄物を処分する場合ほどは容易ではない。

表-5.1 原子力施設の周辺で同定された決定経路，決定核種，決定集団

| 原子力施設 | 国名 | 決定経路 | 決定核種 | 決定集団 | 被曝線量 | | 文 献 |
|-------------------------|-----|-----------|---|------------------|------|-----|--------------|
| | | | | | 個人 | 集団 | |
| Bradwell 原子力発電所 | 英 | カキ | ^{65}Zn | カキの漁業者(10人) | 3.9 | 39 | (2),(7),(10) |
| Trawsfynydd 原子力発電所 | 英 | マス, スズキ | $^{134}\text{Cs}, ^{137}\text{Cs}$'s | 漁業者(10人) | 45 | 450 | (2),(7),(10) |
| Windscale | 英 | 海草で作ったパン | ^{106}Ru | パンの食者(26,000人) | 600 | | (7),(8),(10) |
| Amersham 研究センター | 英 | 飲料水 | ^{90}Sr | ロンドン市民 | | | (4) |
| Berkeley 原子力発電所 | 英 | 小エビ | $^{134}\text{Cs}, ^{137}\text{Cs}$ | 漁業者? | | | (4) |
| Hinkley Point 原子力発電所 | 英 | 魚, エビ | $^{134}\text{Cs}, ^{137}\text{Cs}$ | 漁業者(100人) | 0.4 | 40 | (9) |
| Clinch River (O.R.N.L.) | 米 | 飲料水 | ^{90}Sr | Clinch River の住民 | 900 | | (7) |
| Hanford Site (研究所) | 米 | コロンビア川の川魚 | $^{32}\text{P}, ^{24}\text{Na}, ^{65}\text{Zn}$ | 漁業者 | 360 | | (6),(7) |
| Chalk River 研究所 | カナダ | 飲料水 | ^{90}Sr | Pembroke の住民 | 30 | | (7) |

(注) 被曝線量の単位は、個人(mrem/yr)，集団(mrem・man/yr)

5.2 地中処分場に必要なモニタリングの特性

5.2.1 地下水汚染の特徴

汚染原因物質を放射性物質に限らず、重金属、有機物等に拡張してみると、それらによる地下水汚染はそれぞれ日常茶飯事の観がある。不幸にして、これら非放射性物質による地下水環境の汚染の例は多く、それ故その調査・研究例も多い。(11)~(15) これらの調査研究の経験からすると、地下水汚染をめぐる問題には、他の形態の汚染、たとえば大気汚染や海洋の汚染等と異なりつぎのような特徴があるといえる。すなわち、(1)汚染が比較的狭い範囲に限られること、(2)汚染原因物質の移動・伝播速度が遅いこと、それ故、影響が現われ始めるまでに長時間を要すること、(3)一度汚染が生じるとその継続時間が極めて長いこと、(4)発生源の数が通常は単数で、汚染の質(汚染物質)が時間と共に変わりうること、(5)一度汚染した地下水を浄化するための有効な工学的方法が現在では皆無に近く、地下水取水を放棄して水道水に切り換えることによって問題を回避することが多いこと、等である。地下水の汚染範囲はどんなに広くても、分水界を越えるようなことはない。大気汚染が極めて広範囲におよぶのは異なっている。平地部では地下水の汚染域は帯状に細長く伸びる例が多く、ある位置の井戸には汚染が検知されても、すぐ隣の井戸には汚染が検知されないことも稀ではない。また、

この汚染域が時間とともに大気汚染の汚染域のように広範囲に変動することは稀である。すなわち、汚染域の分布が大気汚染では確率論的であるのに対し、地下水汚染（土壌汚染を含む）ではどちらかといえば決定論的である。汚染原因物質の地下水層中での移動速度が一般に遅いのは、汚染原因物質が土壌に収着されるからである。汚染物質にもよるが、移動に要する時間は通常は地下水が移動するのに要する時間の数倍～数千倍にもなる。それ故、一度汚染した地下水層が元の状態に戻るまでに要する時間も極めて長くなる。地下水汚染の実例を調査してみると、汚染源が単一であることが多い。複数個の汚染源による複合汚染が認められることは極めて稀である。これは、地下水の汚染が局地的であることと関係が深い。また汚染源に複数個の汚染原因物質がある場合でも、地下水の汚染は同時には起らず、時間の経過と共に主たる汚染原因物質が変化するのが普通である。フミン酸等の有機酸による着色・着臭が先行し、ついで Cl^- イオン等の陰イオン性物質による汚染、 pH 異常等が続き、最後に陽イオン性物質による汚染が生じる。これは、各々の汚染原因物質の土壌との収着反応に差異が認められるからである。一度、地下水層を汚染してしまうと、それを人為的に回復することは極めて難しい。その主な理由は、汚染域を同定することが難しいこと、仮に汚染域を同定し汚染土壌を撤去したとしても、今度は撤去した土壌の処分が同質の新しい問題を生むこと等である。通常は、地下水の利用を規制して水道水で代用し、問題を回避する例が多い。地下水が限度以上の汚染をうけると、その地下水を誤って飲料水として直接飲用したり、あるいは灌漑用水として利用する場合には農産物を通じて、汚染物質が人体に摂取されることになる。非放射性物質による地下水の汚染と放射性物質による地下水の汚染とは本質的に異なることがない。それ故、非放射性物質による地下水汚染の特徴を把握すれば、放射性物質による地下水汚染をモニターする上で極めて有用である。

5.2.2 地中処分場に必要モニタリング

地下水（土壌）汚染の特徴を考慮して、放射性廃棄物地中処分場周辺に配備すべきモニタリング・システムの性格を明らかにする。地下水の汚染と、例えば大気の汚染とはその様相が著しく異なることはすでに述べた。汚染の様相が異なれば、そのモニタリングのあり方が異なるのは当然である。原子力施設の大気汚染のモニタリングと地中処分場のモニタリングとは次の点においても異なることに留意する必要がある。すなわち、例えば、原子力発電所によって生じる大気汚染のモニタリングは、原子炉に発生した事故を発見するための特殊モニタリングと、⁽¹⁶⁾原子炉の平常運転時の日常モニタリングとに分けて考えられるのが普通である。しかし、廃棄物地中処分場では放射性物質の環境中への漏出量が突然に莫大な量に増加するようなことはなく、仮にそのようなことがあっても所定のモニタリング位置に放射性物質が到達するのは長時間の後であるから、平常時のモニタリングと事故時のモニタリングを分けて考える根拠は薄いといえる。しいていえば、日常的に事故時のモニタリングを継続することになる。

すでに前節で述べたモニタリングの目的を、ここではより具体的につきのように規定することにする。⁽¹⁷⁾この目的はICRPが示した環境モニタリングの目的とほぼ一致している。すなわち、

- ① 地中処分場周辺の環境中に存在する放射性物質の量が許容レベル以下であること（長期的蓄積傾向の把握）、および考えられる被曝の上限値が許容限度以下であることを確認し将来の被曝がどの程度になるかを推定する。

② モニタリング・システムの機能，廃棄物地中処分的手段・方法および処分を継続する上で必要な資料，あるいは何らかの処置が必要な場合にはそれを判断するに足る資料を収集する。

③ 対公衆関係を改善する。

このモニタリングの目的を完全に達成するためには，廃棄物を処分することによって生じる被曝線量の上限値を推定するだけでなく，生じる被曝がどの程度であるかをできる限り正確に知る必要があると思われる。何故なら目的①および③を達成するためには，生じるとされる被曝の上限値が許容限度以下であることを確かめさえすればよいが，目的②を達成するためには放射性物質の地中での存在量，分布域，移行速度，移行経路等をできる限り正確に把握しなければならない。生じる被曝が許容限度以下であることを確かめるためには，人が摂取する食物中の放射性核種濃度とその食物の摂取量とが把握できれば充分なのであって，放射性物質が人に摂取されるに至る移行動態を知る必要はない。このように考えると，地中処分場周辺のモニタリング・システムは2系統の環境調査系をもつのが合理的であることになる。すなわち，目的①および③を達成するための環境調査系と，目的②を達成するための環境調査系である。勿論，2つの調査系は相互に補完的な役割を果す。ここでは前者の系統をPRモニタリング系（PRはPublic Relationsの略）と呼び，後者の系統を動態モニタリング系と呼ぶことにする。

PRモニタリング系の目的は，いうまでもなく，人がうける被曝線量が許容限度以下であることを確かめることを目的にしている。それ故，このモニタリングでは採取した環境試料中に放射性物質が検知されないこと自体が十分な意味を持つことになる。被曝線量の推定精度は，モニタリング対象を人が直接摂取する食物とする場合が最も大きく，モニタリング対象を放射性物質の移行経路に沿って発生源（地中処分場）へさか登らせるに従って小さくなる。それ故，このモニタリング系では食物中の放射性物質量，食生活，食習慣をモニターすることに重点をおき，さらに被曝の上限値を推算するために発生源（地中処分場）における放射性物質の環境中への漏出量を，副次的に把握すればよいことになる。PRモニタリング系のモニタリング位置は，地中処分場の周辺に配置する動態モニタリング系のように，汚染の拡がりと共に必ずしも増す必要はないといえる。処分場周辺での放射性核種による汚染域よりはむしろ人の居住区域や居住形態に注目してモニタリング位置が定められるからである。それ故，一地域に複数の処分場がある場合には住民の被曝が限度以下であることの確認を目的とするこのモニタリング系は複数の処分場に共通の1系統があれば十分にその目的を達成できる場合も多い。

一方，動態モニタリング系では，採取した環境試料中に放射性物質が検出されないようでは意味がない。このモニタリング系が放射性物質の環境中での移行動態をできる限り正確に把握することを目的にしているからである。PRモニタリング系の信頼度が，人が摂取する食物中に含まれる放射性物質の実質的に幾割をモニターすることができるかによって計られるのに対し，動態モニタリング系の信頼度は地中に漏出した全放射性物質量の幾割を監視下におくことができるかによって計られる。すなわち前者の信頼度は人間に摂取される放射性物質のフラックス（flux）の把握度で計られるのに対し，後者は環境中に存在する放射性物質の量（mass）の把握度で計られることになる。地中処分場から地圏環境中に漏出した放射性物質は，非常にゆっくりとではあるが移動してその分布域を次第に広くしていく。それ故，動態モニタリング系の試料の採取位置と採取範囲は時間と共に変化することに

なる。すでに述べたように、放射性物質の地中での移動速度は遅く、かつその移行パターンは大気汚染質の移行パターンに比べるとより決定論的である。このことは、地下水の流動調査等を綿密に実施しておけば、このモニタリングシステムの構成と実施はかなりの程度まで簡略化することができることを意味する。また数年にわたって放射性物質の地中での分布域の広がり方を把握できるようになれば、このモニタリングのために用いる労力と資金は更に減少させることができる。現在では原子力施設周辺の環境モニタリングにはPRモニタリング系としての性格を色濃く持たせることが多いようである。(18)本章第5節で述べるように、動態モニタリング系を補助しその機能を効率よく発揮させるために予知モニタリング系を設置することにする。動態モニタリング系は地中処分場の安全性を確保する上で重要な決定核種 (^{90}Sr 等)の地中での移動と分布とを把握することを目的にする。一方、予知モニタリング系は、決定核種よりも速く地中を移動しかつ人体に対する危険度の低い物質(先行指標物質)の移動方向を把握することを目的にする。それ故、予知モニタリング系は地中処分場の操業に先立ってその周囲に配備される。このモニタリング系で先行指標物質が検知された後、当該予知モニタリング位置の周囲に重点的に動態モニタリング系が配備されることになる。

5.2.3 地中処分場のモニタリング例

放射性廃棄物の地中処分場周辺に配備するモニタリング網を、合理的な判断基準に基づいて設計した例はほとんどない。この実情は非放射性廃棄物の処分場にもあてはまる。これは、大気汚染等と比較して地下水汚染の特徴が特異的であるため、十分な量の現地実測データを手に入れないことに起因している。原子力施設から排出される放射性気体廃棄物のモニタリング網、(16) SO_2 や光化学スモッグ等を対象にする大都市のモニタリング網(19)あるいは気象観測網(20)等は現在すでに合理的な設計理念を確立しつつあるから、これらの考え方を応用することが考えられる。ここでは、我国および諸外国で実施されているモニタリング例を紹介する。

廃棄物の地中処分場で現在用いられているモニタリング網は、その目的から、PRモニタリング系と考えられるものと動態モニタリング系と考えられるものとに区分することが

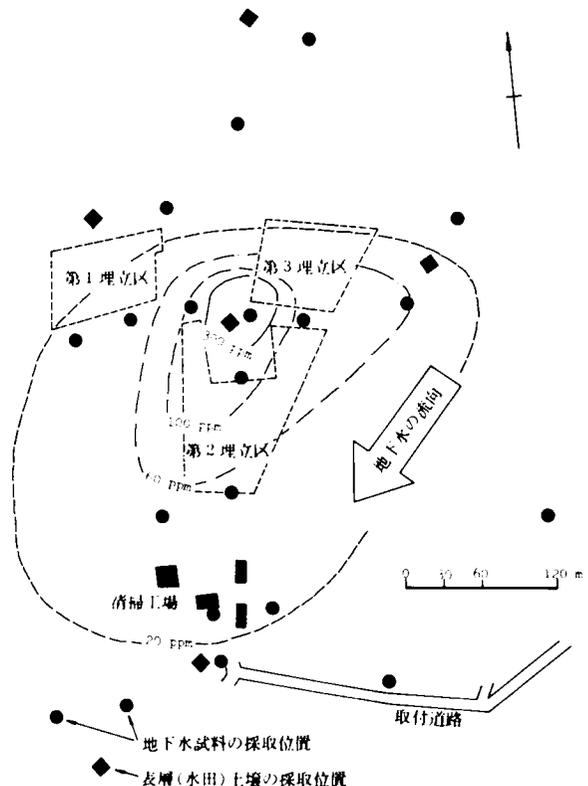


図-5.1 一般廃棄物埋立処分場周辺の環境調査で採用された試料採取位置の配置と地下水中塩素イオン濃度の分布

できる。モニタリング・システムの運営方式からは前者をルーチン・モニタリング系、後者を研究用モニタリング系と考えることもできる。

図-5.1は、⁽²¹⁾都市廃棄物を収集して田河川敷内の凹地に埋設している某都市が廃棄物処分場周辺地下水の汚染現状を把握するために配備した地下水試料採取用井戸の位置を示している。同図には、併せて、地表（水田）土壌の採取位置と、地下水中濃度の分析結果から推定した地下水中塩素イオン濃度分布を示した。図-5.1の井戸は、汚染物質の移動を監視するために必要な環境因子（例えば、地下水位、地層の透水係数）の値を測定するためにも利用されている。地下水採取用井戸は、第一義的には地下水の流動状況を把握するために配備されたのであって、必ずしも汚染物質の移動を把握することを目的に配備されたのではない。しかしながら、すでに述べたように、地中での汚染物質の輸送媒体は地下水であることが多いから、通常は1つの井戸を2つの目的に利用することができる。理想的には、地下水の流動を把握することを目的にした井戸配置によって、必要な資料を得た後、その資料に基づいて汚染物質の移動を把握することを第1目的にする井戸を追加することが望ましい。すでに述べた分類に従えば、図-5.1の例は動態モニタリング系であるといえる。

カナダ、Chalk River 研究所で実施されている放射性核種地中移動の追跡調査の様子を図-5.2に⁽²²⁾示す。図は1952年（1000 Ci の⁹⁰Sr を含む 3.8×10^6 ℓの廃液）、1954年（60 Ci の⁹⁰Sr を含む合計170 Ci、約5,700 ℓの硝酸塩濃度の高い廃液）、および1955年（300 Ci の⁹⁰Sr を含む合計900 Ci、約42,000 ℓの強酸性廃液）に地下注入した廃液中に含まれる放射性核種の移動を追跡調査したものである。処分場および廃液の注入位置の周辺には、基礎岩盤あるいは氷河堆積層に達するモニタリング管（図中○印）が設けられ、汚染域の拡がりに沿って試料土壌を採取するためのサンプリング孔（図中+印）が設けられている。サンプリング孔の間隔は、核種の移動方向に粗く、移動方向に直交する方向に密である。核種の移動方向のサンプリング孔間隔は、現地土壌を用いた室内実験（分配係数値の測定、カラム通水実験等）の結果を用いて決定されており、その総孔数は汚染域の拡大と共に増加されている。この実験は放射性物質の地中移動を記述するためのモデルを構成することを主目的としているが、動態モニタリング系の典型例であるともみなすこともできる。

米ケンタッキー州Morehead (Maxey Flats)にある放射性廃棄物の商業埋立処分場で実施された環境調査の様子を図-5.3に示す。⁽²³⁾同処分場は1963年の操業開始以来1974年までに約10万m³の低レベル固体廃棄物（約80 kg の²³⁹Pu を含む）を処分している。1972年に、ケンタッキー州当局が実施した処分場周辺のモニタリングによって放射能レベルの増加が検知された。そのため、1973年度には、汚染源の同定と汚染程度の現状とを把握するための調査が実施された。図-5.3は、同調査によって採取された敷地境界外試料（主として土壌）の採取位置を示している。汚染原因物質は²³⁸Pu と²³⁹Pu が主であり、現在も、その移動機構を解明するための研究が実施されている。ケンタッキー州当局は、すでに1974年に、Pu等の超ウラン元素を含む廃棄物を同処分場で処分することを制限している。図-5.3の試料採取位置の配備は必ずしも放射性核種による汚染域を同定することを目的にしているとは考えられないが、この例もやはり動態モニタリング系に属すると考えられる。同処分場の周辺には放射能レベルの蓄積傾向を把握するためのモニタリング位置が約40定められており、地下水、地表水、雨水浸透水および空中のトリチウム濃度が定常的に測定されている。⁽²⁴⁾これは地中処分場周辺のPRモニタリング系に相当すると思われるが、試料の採取位置は不明である。

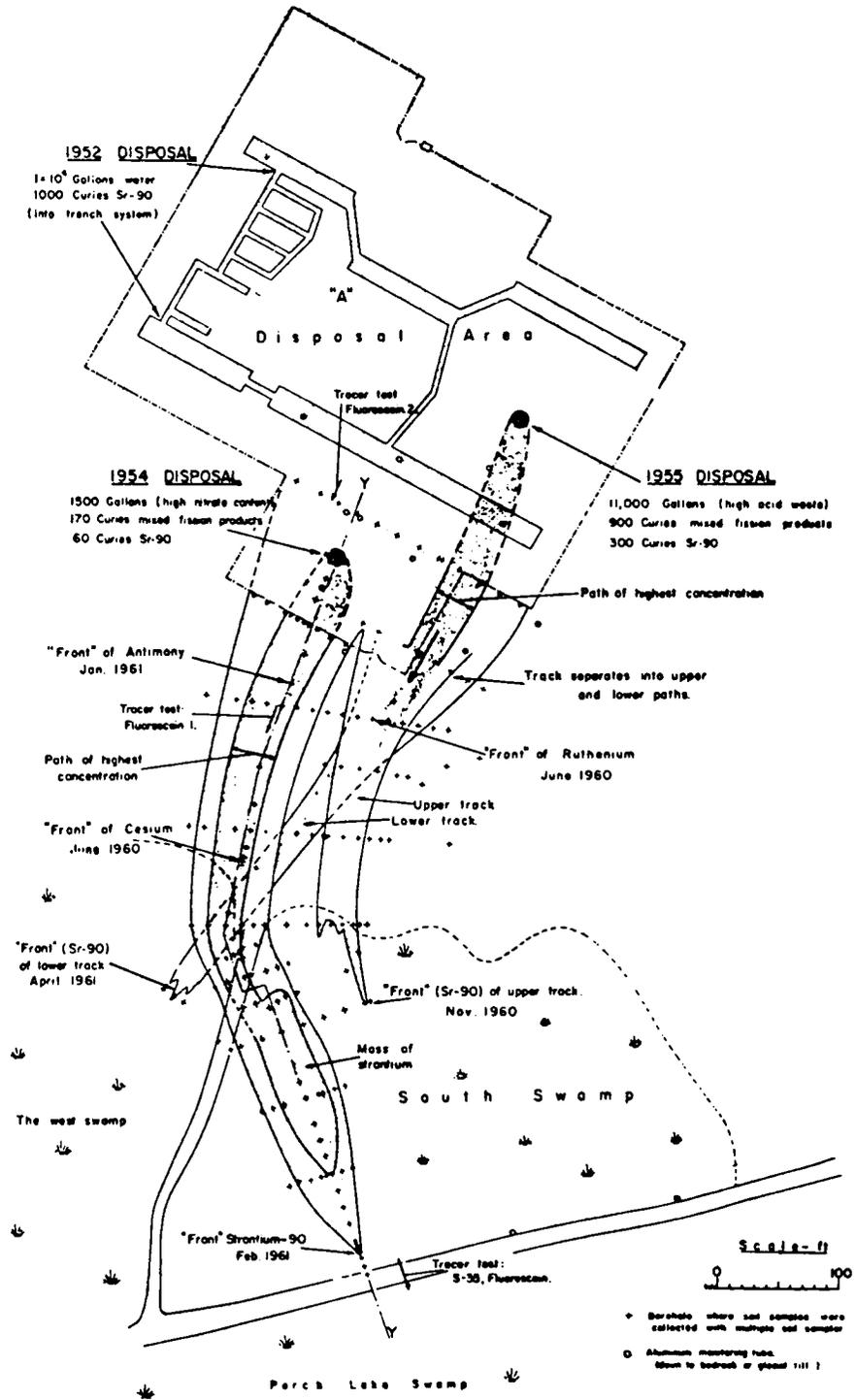


図-5.2 Chalk River 原子力研究所で核種の地中移動を把握するために採用されたモニタリング網 (文献(22)より引用)

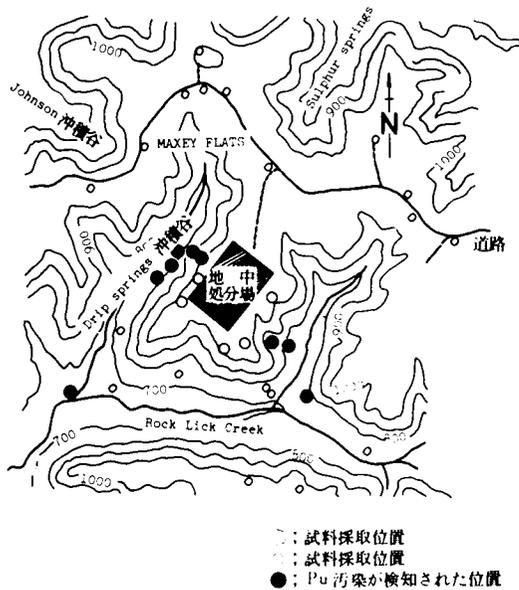


図-5.3 Morehead (Maxey Flats) 廃棄物埋設処分場周辺の環境調査で採用された試料採取位置の配置 (23)

動態モニタリング系が主要な役割を果し、汚染域の広がり固定するにつれて、モニタリングの重点はPRモニタリング系へ移行していくものとする。

5.3 モニタリング項目の選定

地中処分場周辺の環境モニタリング・システムを設計する場合には、当初から厳格なシステムを構成するよりは、モニタリングの実施によって得られる情報をフィード・バックして、より簡潔で合理的なシステムを再構成できるような弾力性をもたせることが望ましい。初期のモニタリングでは、決定経路、決定核種、決定集団、指標生物等を同定するためにスクリーニング的な環境調査が必要であると思われる。初期のモニタリングによって得られた資料を用いて、環境調査を目的的に簡略化したり、モニタリング項目に重要度(優先)順位を付して、環境調査を重点的に再編成する必要がある。ここでは、モニタリング項目を合理的に選定する方法と、モニタリング項目の重要度を評価する方法について検討する。放射性物質の地中処分場周辺環境中での簡略化された移行経路として図-4.1を想定することにする。図-4.1を再び右に示す。

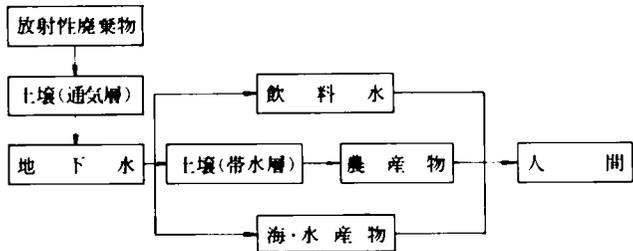


図-4.1 想定した放射性核種の環境中での移行経路

我国の原子力発電所における環境試料の採取位置、試料の種類をみると、(25)、(26) そのモニタリング計画はスクリーニング計画的特色を強く持っていることがわかる。このモニタリングはPRモニタリングとしての性格を強くもっている。また原子力施設と人の住居とがあまり離れていないことも原因して、環境試料は広範囲に、強いて言えば人の居住区域をとり囲むような形で採取されている。これに対して、原子力施設の種類の異なるから直接比較することはできないが、例えば米国の廃棄物地中処分場の環境モニタリングにおいては、むしろ処分場をとり囲むような形で環境試料が採取されているような印象をうける。PRモニタリング系と動態モニタリング系とは相互に補完的な役割を果す。特に廃棄物処分場周辺のモニタリングにおいては、当初は動態

5.3.1 考えられるモニタリング項目⁽²⁷⁾

想定した放射性物質の移行経路(図-4.1)に従ってモニタリング項目を選定すると、次の11項目になる。ここではモニタリング項目を放射性物質のみに注目して選定したが、次節でも述べるように、非放射性物質をモニタリング項目に選定することによっても、モニタリングの目的の一部を効率よく達成することができる。地下水の流速、拡散係数等の環境因子値は別の調査によって把握するものとする。ここで選定した11のモニタリング項目は、濃度を把握の対象としているものと移行量(フラックス)を把握の対象としているものがあり、見掛け上は必ずしも同じ判断レベルにおいて選定されていない。移行量(フラックス)を直接測定することはできないから、それは濃度を測定して間接的に推定することになる。

考えられるモニタリング項目はつぎのとおりである。すなわち、放射性廃棄物から地中に漏出する放射性物質質量(q_0)、放射性物質の帯水層中への移行量(q_1)、放射性物質の公共水域への移行量(q_2)、放射性物質の地下水中濃度(C)、および土壌中濃度(q)、農産物中濃度(q_p)、水産物中濃度(q_{sf})、海などの公共水中濃度(S)、さらに飲料水、水産物、農産物を摂取することによって受けると考えられる内部被曝線量(Ds_1 , Ds_2 , Ds_3)である。これらのモニタリング項目の性質は以下のとおりである。

(1) 地中への漏出量(q_0)：放射性廃棄物の地中への処分量ではなく、処分された廃棄物から地中へ漏出する放射性物質質量である。 q_0 は廃棄物の処分施設を適切に設計することによって、容易に把握することができると思われる。例えば、廃棄物からの浸出液や廃棄物と接触した雨水浸透水が一箇所に集まった後地中へ移行するような処分方式を採用したり、廃棄物層の底部に浸出液を採取できるような設備を設けること等が考えられる。放射性物質の廃棄物からの浸出率が所定の精度で既知の場合には、 q_0 の代りに廃棄物の処分量を用いることができる。 q_0 を測定することは、モニタリングの目的を達成するための基本的な要件であるから、慎重な配慮が必要である。廃棄物の埋設処分用トレンチでは、 q_0 を推定するためのモニタリング孔が1トレンチ当たり数個用意されるのが普通である。

(2) 帯水層への移行量(q_1)：放射性廃棄物は通常は地下水面より上の地層(通気層)中に処分される。廃棄物から地中に漏出した放射性物質は雨水浸透水等に運ばれて帯水層(地下水層)に達する。この帯水層へ移行する放射性物質質量が q_1 である。通気層中での放射性核種の挙動は、第3章で論じたように土壌水分の移動との関係が強い。複雑な地層中での土壌水分の移動については、まだ未解明の部分が多く、それ故通気層中に存在する放射性物質質量を把握するためには数多くの土壌のコアー・サンプルをとる等の手段を講じる必要がある。Cribを用いて放射性廃液を地下処分しているHanfordで通気層中にある放射性物質質量を把握した例があるが、⁽²⁸⁾ 固体廃棄物の埋立処分場でそのような調査が実施されたとの報告はない。米国に比べて通気層の厚さが小さい我国では、調査は比較的容易であろうが、それでも尚解決すべき困難な問題が多く残されている。

(3) 海への移行量(q_2)：帯水層中へ移行した放射性物質は、やがて地下水とともに海水中へ移行する。処分場から海までの距離は通常は長い(我国の原子力施設の例では300m~1200m：表-4.16参照)から、放射性物質は海岸線のかなりの部分から海水中へ移行するものと思われる(図-4.20参照)。廃棄物地中処分場の地先海岸に、海岸線に沿って多くの井戸を設置すれば、 q_2 を把握することは不可能ではない。しかしながら q_2 を精度よく把握するためには、かなりの努力が必要であ

と思われる。地中を移動して公共水域へ移行する放射性物質質量を実測値に基づいて推定した例は極めて少ない。 q_2 を正確に把握するためには、例えば海岸線に平行に一系列のモニタリング・ラインを設定するよりは、放射性物質の地中での分布域の拡がりを逐次追跡するようなモニタリング網を構成する方が有効であろう。

(4) 地下水中濃度(C): 地中処分場周辺の適当な位置にサンプリング井戸を設けて地下水を採取すれば、その濃度を把握することは容易である。処分場の近くに湧水や、地下水をくみあげている井戸がある場合には、その地下水をサンプリングすることが有効である場合も多い。⁽²⁹⁾

(5) 土壌中濃度(q): ここでモニタリングの対象にする土壌は、地中に処分した廃棄物に由来する核種によって汚染する可能性がある土壌である。すなわち、例えば地下水を灌漑用水として利用している畑や水田の土壌等が対象になる。通常、放射性核種は土壌によって収着・保持されるから、核種の地下水中濃度を測定する代りに、帯水層土壌中濃度を測定する方が有効である場合もある。土壌中の放射性核種濃度を測定することは困難ではないが、土壌試料を採取することは地下水試料を採取するほどは容易ではない。また核種の土壌中濃度分布は局地的な環境因子の変動の影響を地下水中濃度分布よりも強くうけると考えられる。

(6) 農産物中濃度(q_p): 放射性物質を含む地下水を灌漑用水として用いて栽培した植物(農産物)、あるいは地表に湧出した地下水によって生育した食用植物中の放射性物質の濃度が q_p である。 q_p の測定はそれ程困難ではないと思われるが、放射性降下物(フォール・アウト)あるいは近くに他の原子力施設があって気体廃棄物を排出している場合には、それらとの複合影響を把握することになる。これは土壌中濃度を測定する場合も同じである。特定の放射性核種を選択的に吸収する植物があれば、それを所定の位置に植えて指標植物にすることも考えられる。

(7) 水産物中濃度(q_{sf}): 放射性廃棄物地中処分場周辺地下水が流出する公共水域(河、沼、湖、海等)で採取される水産物中濃度である。我国では、ほとんどの原子力施設が海岸に立地していることから、特に海産物中濃度が重要になると思われる。水産物中濃度を測定することはそれ程困難ではないが、測定値はフォール・アウトの影響や、近くに原子力施設があって廃液を放流している場合にはその影響をも反映する。海苔のような定着性の海産物の q_{sf} を測定する場合は問題が少ないが、海域を自由に回遊する魚類の場合には、放射性物質濃度の測定は容易でも、採取した試料あるいはその濃度測定値がどの程度問題にしている海域の海産物中濃度を代表しているかという点で困難な問題が残されている。

(8) 公共水中濃度(S): 地中処分場前面海域の海水中放射性物質濃度が S である。モニタリング項目として S を選ぶ場合には、所定の水域の放射性核種濃度を代表するような試料数と試料採取位置とを定める必要がある。水を試料にする代りに海底土、河川底質等を試料にして長期的な蓄積傾向を把握することも重要である。

(9) 内部被曝線量(Ds_1, Ds_2, Ds_3): 廃棄物を地中処分した場合に、食物連鎖を通じて人間が受ける内部被曝線量である。ここでは主として飲料水(Ds_1)、水産物(Ds_2)、農産物(Ds_3)の摂取による被曝を考えている。モニタリングの目的はこの被曝線量を正確に把握すればその大半が達成されたことになるが、この線量を直接に測定することは極めて困難である。通常は食品の流通調査、食習慣の調査を実施し、食品中の放射性物質濃度等を測定して間接的に推定することになる。

各モニタリング項目の性質を整理して表-5.2に示す。同表には、各モニタリング項目が図-4.1に示す放射性物質の移動経路の内、どの経路との関係が深いか、また各モニタリング項目に関連する環境因子は何かを併せて示している。上記モニタリング項目についてのモニタリングの難易についての判断は一応のめやすであって明確な判断基準に基づいているわけではない。いつ、どの位置から、どのような方法で試料を採取し、測定するかはさらに具体的に検討しなければならない。これらのモニタリング項目を選定した場合には、それらの試料を採取する他に、例えば表-5.2に示すような環境因子値を把握するための調査を実施する必要がある。

表-5.2 モニタリング項目の性質一覧

| モニタリング項目 | モニタリングの | | 関連する核種の移行経路 | | | 関連する環境因子 |
|----------|----------|---|-------------|-----|-----|-------------------------------|
| | 難 | 易 | 飲料水 | 水産物 | 農産物 | |
| q_0 | | 易 | ○ | ○ | ○ | (処分方式, 気象条件等) |
| q_1 | | 難 | ○ | ○ | ○ | v_a, H, f, ρ, S, kd |
| q_2 | | 難 | | ○ | | v, L_2, f, ρ, kd |
| C | | 易 | ○ | | ○ | $d, L_1, L_3, v, f, \rho, kd$ |
| q | | 易 | ○ | | ○ | $d, L_1, L_3, v, f, \rho, kd$ |
| q_p | | 易 | | | ○ | CF_p, kd |
| q_{sf} | | 難 | | ○ | | CF_{sf} |
| S | | 易 | | ○ | | P, θ |
| D_s | D_{s1} | 難 | ○ | | | P_d |
| | D_{s2} | 難 | | ○ | | P_{sf}, I_{sf} |
| | D_{s3} | 難 | | | ○ | P_p, I_p |

5.3.2 モニタリング項目と内部被曝線量

想定したモニタリング項目と内部被曝線量との関係を明らかにする。用いる記号の意味、および定式化の際に想定する前提条件は第4章2節で用いた条件と同じである。

(1) q_0 をモニターする場合

$$\left\{ \begin{aligned}
 D_{s,1} &= \frac{P_d K_f D q_0}{2\pi d \sqrt{D_x D_y} MPC_w} \exp \left\{ \frac{v L_1}{2D_x} - \frac{0.693}{t_{1/2}} \frac{H K_{fa}}{v_a} \right\} K_0(L_1) \\
 D_{s,2} &= \frac{P_{sf} I_{sf} C F_{sf} D q_0}{4400\pi \theta P D_r MPC_w} \exp \left\{ -\frac{0.693}{t_{1/2}} \left(\frac{H K_{fa}}{v_a} + \frac{L_2 K_f}{v} \right) \right\} \\
 &\quad \times K_0 \left\{ \sqrt{\frac{0.693}{t_{1/2}} \frac{r_2}{D_r}} \right\} \\
 D_{s,3} &= \frac{P_p I_p C F_p kd K_f D q_0}{4400\pi d \sqrt{D_x D_y} MPC_w} \exp \left\{ \frac{v L_3}{2D_x} - \frac{0.693}{t_{1/2}} \frac{H K_{fa}}{v_a} \right\} K_0(L_3)
 \end{aligned} \right. \dots\dots (5-1)$$

(2) q_1 をモニターする場合

$$\begin{cases} D_{s,1} = \frac{P_d K_f D q_1}{2\pi d \sqrt{D_x D_y} MPC_w} \exp\left\{-\frac{v L_1}{2D_x}\right\} K_0(L_1) \\ D_{s,2} = \frac{P_{sf} I_{sf} C F_{sf} D q_1}{4400 \pi \theta P D_r MPC_w} \exp\left\{-\frac{0.693}{t^{1/2}} \frac{L_2 K_f}{v}\right\} K_0\left\{\sqrt{\frac{0.693}{t^{1/2}} \frac{r_2}{D_r}}\right\} \dots\dots (5-2) \\ D_{s,3} = \frac{P_p I_p C F_p k_d K_f D q_1}{4400 \pi d \sqrt{D_x D_y} MPC_w} \exp\left\{-\frac{v L_3}{2D_x}\right\} K_0(L_3) \end{cases}$$

(3) q_2 をモニターする場合

$$D_{s,2} = \frac{P_{sf} I_{sf} C F_{sf} D q_2}{4400 \pi \theta P D_r MPC_w} K_0\left\{\sqrt{\frac{0.693}{t^{1/2}} \frac{r_2}{D_r}}\right\} \dots\dots (5-3)$$

(4) C をモニターする場合

$$\begin{cases} D_{s,1} = \frac{P_d D C}{MPC_w} \dots\dots\dots (5-4) \\ D_{s,3} = \frac{P_p I_p C F_p k_d D C}{2200 MPC_w} \end{cases}$$

(5) q をモニターする場合

$$\begin{cases} D_{s,3} = \frac{P_p I_p C F_p D q}{2200 MPC_w} \\ \text{試料土壌を帯水層から採取する場合は} \dots\dots\dots (5-5) \\ D_{s,1} = \frac{P_d D q}{k_d MPC_w} \end{cases}$$

(6) q_p をモニターする場合

$$D_{s,3} = \frac{P_p I_p D q_p}{2200 MPC_w} \dots\dots\dots (5-6)$$

(7) q_{sf} をモニターする場合

$$D_{s,2} = \frac{P_{sf} I_{sf} D q_{sf}}{2200 MPC_w} \dots\dots\dots (5-7)$$

(8) S をモニターする場合

$$D_{s,2} = \frac{P_{sf} I_{sf} C F_{sf} D S}{2200 MPC_w} \dots\dots\dots (5-8)$$

図-4.1 に示す各経路を経て人体がうけると考えられる内部被曝線量 D_s は次式で与えられる。

$$D_s = D_{s,1} + D_{s,2} + D_{s,3} \dots\dots\dots (5-9)$$

式(5-1), 式(5-2)の K_0 は第2種0次変型ベッセル関数で, 第1, および第3式中の $K_0(x)$ は次の略形である。

$$K_0(x) = K_0 \left[\sqrt{\frac{x^2}{Dx} \left(\frac{v^2}{4Dx} + \frac{0.693}{t_{1/2}} K_f \right)} \right] \dots\dots\dots (5-10)$$

5.3.3 モニタリング項目の選定

モニタリング項目に何を选ぶかは, モニタリング・システムを構成・設計する場合に用いる設計目標によって変わる。これは, モニタリング項目だけでなく, モニタリング位置, モニタリングの時間間隔を決定する場合にもあてはまる。この設計目標は具体的には, 例えば資金量(経済的条件), モニタリング・システムに持たせる精度(どのレベル以上の被曝が生じる場合をモニタリングの目標とするか, あるいは人が受ける被曝の幾割をモニターすることを目標にするかという技術的条件), 利用できるマン・パワーおよび技術水準等を組み合わせて決定されることになろう。

PRモニタリング系では, 特にその初期の段階(スクリーニング・モニタリングの段階)に多種類のモニタリング項目を重複して選定する。我国の原子力発電所敷地周辺の環境モニタリングの現状はほぼこの段階にあるといえる。PRモニタリング系は心理的な面においても周辺住民の安全を保障することを目的にしているから, モニタリング・データの集積を得ても, 単に効率的な視点からのみモニタリング項目の種類や重複度を減じることは難しいことであろう。例えば, モニタリング項目を植物に限定するとして, 植物のうち大根とホウレン草とをモニタリング試料にする場合を考える。モニタリング・データの集積によって大根, ホウレン草各々の放射能レベル間に強い相関があることがわかれば(例えば相関係数0.8), いずれか一方はモニタリング試料から除外することができる。しかしながら, いずれか一方を除外すれば, 人の受ける被曝線量を把握する割合が, この場合少くとも0.2に相当する分だけは減少することになる。相関係数がいくら以上であれば, 一方をモニタリング試料から除外しうるかは, 技術的な検討のみによっては定めることができない。一方, 動態モニタリング系では処分した放射性廃棄物から浸出した放射性核種の環境中での分布域(汚染域)を把握することを直接の目的にしている。それ故, モニタリング項目も, 効率や精度のような技術的な検討に基づいて選定することができよう。

モニタリング項目の性質についてはすでに検討した。ここではモニタリング・データを用いて推定する人間の内部被曝線量の推定精度を良くするためには, どの項目をモニタリング項目に選定するのが有利であるかを決定する考え方について検討する。

第4章2節および3節において検討したように(表-4.7, 表-4.13参照), 放射性廃棄物地中処分場周辺での決定経路は農産物摂取の経路, すなわち(放射性廃棄物)→(地下水)→(灌漑用水)→(農産物)→(人間)の経路になる可能性が大きい。表-4.13によれば処分場から問題になる地点までの距離が等しい場合($L_1 = L_2 = L_3 = 500$ m), 全経路による被曝線量中に占める農産物摂取の経路による被曝線量は99.7%, 飲料水摂取の経路による被曝線量は0.3%, 一方水産物摂取の経路による被曝線量はほぼ 10^{-13} %にすぎない。このことは, モニタリング項目を選定する場合には, 特に農産物摂取の経路に関係がある項目を重点的に選定すべきことを意味している。しかし, このこ

とは水産物摂取の経路に関係がある項目を無視してよいことを意味するのではない。何故なら、上述の計算が正しいことを確かめることがモニタリングの目的を達成するために不可欠であるからである。

同一経路においてもモニタリング項目は多くある。例えば、農産物摂取の経路においては比較的測定が容易な項目として、地下水中の放射性核種濃度 C 、土壌中核種濃度 q 、農産物中濃度 q_p 等がある。ここでは、これら同一経路内にあるいくつかのモニタリング項目の内、いずれを採用すれば被曝線量の推定値 Ds に含まれる誤差が小さくなるかについて検討する。同一経路上にあるモニタリング項目を x_1, x_2 とし、放射性核種の移行経路（図-4.1 参照）において、 x_2 は x_1 よりも人間に近いとする。それ故、 x_2 をモニタリングする場合は x_2 と被曝線量 Ds との間に成立する関数関係 $Ds = Ds(x_2)$ を用いて Ds を推定することになる。一方、 x_1 をモニタリングする場合には、 x_1 と x_2 との間に成立する関数関係 $x_2 = f(x_1)$ を用いて x_2 を推定し、その後 $Ds = Ds(x_2) = Ds\{f(x_1)\}$ を用いて Ds を推定することになる。この関係を

図-5.4 に示す。図-5.4 において、 x_1, x_2 をモニタリングする場合に生じる誤差を各々 $\Delta x_1, \Delta x_2$ とする。この誤差には、分析（測定）誤差、採取したモニタリング試料が正しく核種の移行経路上にないことによる誤差等が含まれる。問題を簡潔にするために、関数 $Ds = Ds(x_2)$ のみ一義的に成立 ($\partial Ds / \partial x_2$ を定義できる) し、関数 $x_2 =$

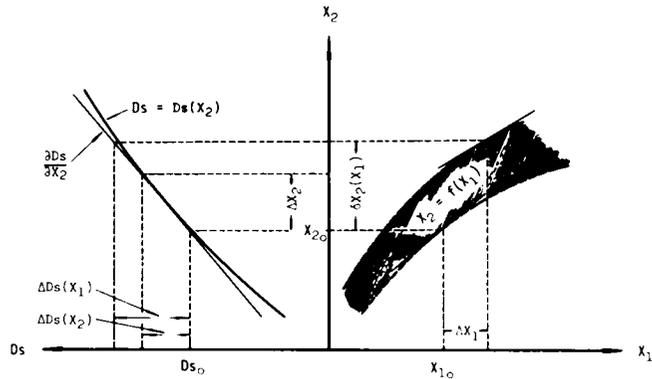


図-5.4 モニタリング項目と誤差の伝播

$f(x_1)$ はある誤差を持つ、すなわちある幅をもつ関数として定まる ($\partial x_2 / \partial x_1$ は一義的には定義できず、ある幅を持つ) と仮定する。このとき x_1 をモニターし、関数 $x_2 = f(x_1)$ を用いて x_2 を推定するとき生じる x_2 の誤差 (Δx_1 の伝播誤差と関数 f のもつ誤差との和) を $\delta x_2(x_1)$ 、さらに Ds を推定するとき Ds に生じる誤差 (δx_2 の伝播誤差) を $\Delta Ds(x_1)$ とする。一方、 x_2 をモニターし、関数 $Ds = Ds(x_2)$ を用いて Ds を推定するとき生じる Ds の誤差 (Δx_2 の伝播誤差) を $\Delta Ds(x_2)$ とする。このとき次の関係式が近似的に成立する。

$$\delta x_2 = \left\| \frac{\partial f}{\partial x_1} \right\| \Delta x_1 \quad \dots\dots\dots (5-11)$$

$$\begin{aligned} \Delta Ds(x_1) &= \frac{\partial Ds}{\partial x_2} \delta x_2 \\ &= \frac{\partial Ds}{\partial x_2} \left\| \frac{\partial f}{\partial x_1} \right\| \Delta x_1 \quad \dots\dots\dots (5-12) \end{aligned}$$

$$\Delta Ds(x_2) = \frac{\partial Ds}{\partial x_2} \Delta x_2 \quad \dots\dots\dots (5-13)$$

関数 f がある幅をもっているため、 $\partial f / \partial x_1$ もある幅をもつ。ここでは、この幅をもつ値の大きさを $\|\partial f / \partial x_1\|$ と記している。 D_s の推定誤差を $\Delta D_s(x_1) / D_{s0}$ 、 $\Delta D_s(x_2) / D_{s0}$ で表わすと、式(5-11)～式(5-13)より

$$\Delta x_2 \geq \|\partial f / \partial x_1\| \Delta x_1 \quad \text{すなわち} \quad \Delta x_2 / \Delta x_1 \geq \|\partial f / \partial x_1\| \quad \text{のとき}$$

$$\frac{\Delta D_s(x_2)}{D_{s0}} \geq \frac{\Delta D_s(x_1)}{D_{s0}} \quad \dots\dots\dots (5-14)$$

$$\Delta x_2 \leq \|\partial f / \partial x_1\| \Delta x_1 \quad \text{すなわち} \quad \Delta x_2 / \Delta x_1 \leq \|\partial f / \partial x_1\| \quad \text{のとき}$$

$$\frac{\Delta D_s(x_2)}{D_{s0}} \leq \frac{\Delta D_s(x_1)}{D_{s0}} \quad \dots\dots\dots (5-15)$$

となる。ここに D_{s0} は $\Delta x_1 = \Delta x_2 = 0$ のときの被曝線量である。それ故、被曝線量の推定精度を向上させることを主目的にモニタリング項目を選定する場合は、式(5-14)が成立する $\Delta x_2 / \Delta x_1 \geq \|\partial f / \partial x_1\|$ のときは x_1 をモニターし、逆に $\Delta x_2 / \Delta x_1 \leq \|\partial f / \partial x_1\|$ のときは x_2 をモニターすればよいことになる。 Δx_1 、 Δx_2 はそれぞれ x_1 、 x_2 をモニターする場合の誤差であるから、互に独立な変数であることに注意する必要がある。

$x_1 = C$ (核種の地下水中濃度)、 $x_2 = q$ (土壌中濃度) として、被曝線量を精度よく推定するためにはいづれをモニタリング項目に選ぶのが望ましいかを試算する。 C 、 q をモニターするときに生じる誤差、 ΔC 、 Δq が主として放射能計測時の統計誤差であると考え、

$$\Delta C = \sqrt{C/t} \quad , \quad \Delta q = \sqrt{q/t} \quad \dots\dots\dots (5-16)$$

である。ここに t は計測時間である。一方、 C と q との関係は図-5.5 に示すように、一般的に次式で与えられる。図-5.5 では、 $n = 1.3$ 、 $k = 34 \sim 100$ である。

$$q = k \cdot C^n \quad \dots\dots (5-17)$$

式(5-16)、式(5-17)を用いて計算すると式(5-15)が成立する、すなわち C をモニターする方が有効になる範囲は $C \leq (1/n^2 k)^{1/n-1} = 6.2 \times 10^{-7} \sim 3.7 \times 10^{-8} \mu Ci / ml$ 、対応する q の範囲は式(5-17)より $q \leq (1/n^{2n} \cdot k)^{1/n-1} = 3.7 \times 10^{-7} \sim 2.2 \times 10^{-8} \mu Ci / g$ となる。それ故、この試算例では地下水中の核種濃度が $3.7 \times 10^{-8} \mu Ci / ml$ 以下の場合には地下水をモニタリング項目とし、 $6.2 \times 10^{-7} \mu Ci / ml$ 以上の場合は土壌をモニタリング項目に選ばればよいことになる。 $3.7 \times 10^{-8} \sim 6.2 \times 10^{-7} \mu Ci$

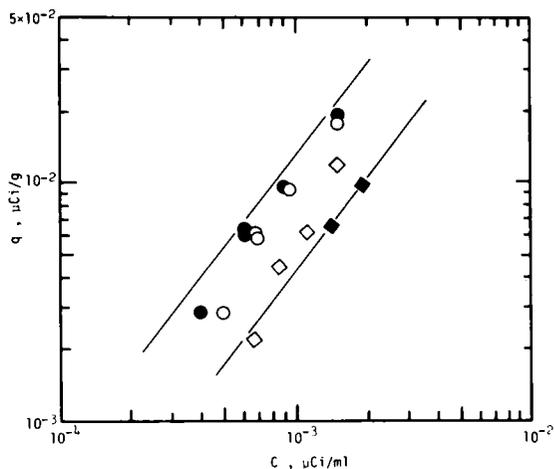


図-5.5 放射性核種 (^{90}Sr) の土壌中濃度 q と地下水中濃度 C との相関(実測値の組 (C, q) はほぼ2本の直線の間にはいる)

／mlの範囲では、例えばモニタリング試料の採取の難易、分析の難易等を考慮していずれかを定めればよい。ところでDenham⁽³⁰⁾によれば地下水中の⁹⁰Srの検出限界濃度は $2 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$ である。それ故、モニタリングの対象核種が⁹⁰Srである場合には、この試算例では、土壌をモニタリング試料にする方がよさそうである。この関係は土壌が変われば式(5-17)中の値 k 、 n が変わるから一般的な結論ではない。

このような試算を量的にも意味あるものにするためには、誤差 $\Delta x_1, \Delta x_2$ の性質、 $\Delta x_1, \Delta x_2$ と x_1, x_2 との関係、 x_1, x_2 と被曝線量 D_s との関係等をモニタリング・データに基づいて把握する必要がある。モニタリング項目相互間の関係、モニタリング項目と被曝線量との関係を定量化することができれば(必ずしも核種の移行機構が解明される必要はない)、いずれのモニタリング項目を優先的に選定すべきかは式(5-14)または式(5-15)によって判断することができる。ただし、次の条件が成立する場合には判断基準はいくらか簡単になる。すなわち、当核モニタリング項目をモニターする場合に生じる誤差の大きさ(Δx)が同程度である場合には、式(5-12)、式(5-13)より、次の関係

$$1 \geq \|\partial x_2 / \partial x_1\| \quad \dots\dots\dots (5-17)$$

が成立するときに x_1 をモニターすれば、 D_s の推定誤差 $\Delta D_s(x_1)$ が $\Delta D_s(x_2)$ より小さくなる。また、相対誤差($\Delta x/x$)が同程度である場合には、次の関係

$$1 \geq \|\partial \ln x_2 / \partial \ln x_1\| \quad \dots\dots\dots (5-18)$$

が成立するときに x_1 をモニターすれば、 D_s の推定誤差 $\Delta D_s(x_1)/D_{s0}$ が $\Delta D_s(x_2)/D_{s0}$ よりも小さくなる。

モニタリング項目と被曝線量との間に式(5-1)～式(5-9)が成立するとして感度 $\partial \ln D_s / \partial \ln x$ および感度係数 $\partial D_s / \partial x$ を計算し、結果を表-5.3に示す。計算の基準状態としては表-4.9を用いた。本節で想定しているモニタリング項目については、 D_s に対する感度および感度係数は全て正值をとることがわかる。

表-5.3 モニタリング項目の被曝線量に対する感度および感度係数

| 感 度 | | |
|--|--|--|
| $\partial \ln D_s / \partial \ln q_{sf} = 1$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln S = 1$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln q_p = 1$ |
| $\partial \ln D_s / \partial \ln C = 1$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln q = 1$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln q_2 = 1$ |
| $\partial \ln D_s / \partial \ln q_1 = 1$ | $\partial \ln D_s / \partial \ln q_0 = 1$ | |
| 感度係数 | | |
| $\partial D_s / \partial q_{sf} = 1.0 \times 10^9$ | $\partial D_s / \partial S = 1.0 \times 10^{11}$ | $\partial D_s / \partial q_p = 3.4 \times 10^3$ |
| $\partial D_s / \partial C = 2.4 \times 10^{12}$ | $\partial D_s / \partial q = 3.4 \times 10^{10}$ | $\partial D_s / \partial q_2 = 6.3 \times 10^{-2}$ |
| $\partial D_s / \partial q_1 = 2.5 \times 10^{-1}$ | $\partial D_s / \partial q_0 = 5.1 \times 10^{-2}$ | |

(注) 各モニタリング項目の単位はmrem, μCi , yr, ml, gを用いて構成されている。感度は無次元であるが、感度係数は次元を有する。

表-5.3は被曝線量 Ds に対する各モニタリング項目がいずれも1であることを示している。これは Ds とモニタリング項目とが式(5-1)～式(5-8)で記述されるように比例関係にあることから生じる当然の結果である。それ故、各モニタリング項目の把握に際して生じる相対誤差($\Delta x/x$)が同程度である場合には、 Ds の推定精度を改善するためにはいずれのモニタリング項目を選定してもよいことになる。一方、 Ds に対する各モニタリング項目の感度係数はそれぞれ異なった値をもつ。各モニタリング項目の把握に際して生じる誤差の大きさ(Δx)が同程度である場合には、海産物、農産物、飲料水の各経路とも感度係数が最も小さい q_0 をモニタリング項目にするのが Ds の推定精度を改善するために好ましいことになる。誤差($\Delta x/x$ または Δx)に関する仮定が成立しない場合には、同様の判定を式(5-14)、式(5-15)を用いて行なうことになる。

5.4 核種移動の先行指標

前節では放射性核種を含む環境試料をモニタリング項目にする場合について検討した。本節では、当該放射性核種以外の環境因子をモニタリング項目に選ぶことを検討する。放射性廃棄物地中処分場の安全性を支配する決定核種の移動に先立って移動する危険度の低い放射性核種やあるいは非放射性物質があれば、それらをモニタリング項目に選定することによって決定核種の移動に先立ってその移動を予知することができる。ここでは、これらの物質を先行指標(物質)と呼ぶことにする。

核種移動の先行指標になりうる物質としては、放射性核種では3重水素水(HTO)⁽³¹⁾コロイドを形成して地中での移動速度が速い ^{90}Y ⁽³²⁾また、廃棄物地中処分場での追跡調査によって地中での移動速度が速いことが知られている ^{104}Ru ^{(28),(33)}等がある。また非放射性物質では $Ca + Mg$ 濃度⁽³⁴⁾水素イオン濃度(pH)⁽³⁵⁾染料、ある種の腐食酸、陰イオン(Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} 等)^{(36),(37)}等がある。放射性核種を先行指標に用いるためには、その放射性核種が廃棄物中に含まれていること、あるいは人為的に添加することが必要条件になる。特に ^{90}Y を先行指標にするためには親核種である ^{90}Sr が廃棄物中に含まれていなければならない。廃棄物をセメント固化して地中に埋設すると、下流側地下水中の pH や $Ca + Mg$ 濃度が変化することが知られている。^{(34),(35)} 廃棄物を固化せずそのまま地中に埋設すれば廃棄物が腐食し、その時に生じる腐食酸(フミン酸等)や陰イオンは陽イオンに比べると速く地中を移動する。本節では、これらの先行指標を利用することによって、どの程度有効に放射性核種の移動を予測するかを明らかにする。先行指標による予測は例えば、核種の移動を記述する基礎式による予測に比べて、予測の信頼度がより大きいことが特徴である。すなわち、当該地点へ放射性核種が到達するか否かは、基礎式による予測は迅速であっても失敗することがあるが、先行指標による予測はほとんど失敗する可能性がない。ただし、以下に述べるように常に先行指標を用いることができるとは限らない。先行指標を用いることができる場合には個々の指標に応じて一定の制約がある。

5.4.1 ^{90}Y の利用

放射性廃棄物地中処分場の安全性を検討する場合には、 ^{90}Sr が決定核種になる例が多いことはすでに何度か述べた。 ^{90}Y は ^{90}Sr の娘核種であり、半減期が短かく(約64時間)、人体に与える放射能毒性も ^{90}Sr に比べて小さい(MPC_w は ^{90}Sr の50倍)。第3章3節で述べたように ^{90}Y は通常の地下水中には非イオン状態で存在し、地中をほぼ地下水と同じ速度で移動することが多い。これらの現象は

^{90}Sr の移動の先行指標として ^{90}Y を利用できる可能性があることを示している。

^{90}Sr の地中（地下水層中）での移動を輸送拡散方程式で記述できるものとすれば、それはつぎのようになる。ここでは簡単のために次元の場合について検討する。すなわち、

$$\begin{cases} \frac{\partial C}{\partial t} + \frac{1-f}{f} \rho \frac{\partial q}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} (D_x \frac{\partial C}{\partial x}) - \frac{\partial}{\partial x} (v_x C) - \lambda_{sr} \{ C + \frac{1-f}{f} \rho q \} \\ q = kd C \end{cases} \dots\dots (5-19)$$

となる。一方、 ^{90}Y の移動を記述する式は、 ^{90}Y が土壤に吸着されない($kd_Y = 0$)から、

$$\frac{\partial a}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} (D_x \frac{\partial a}{\partial x}) - \frac{\partial}{\partial x} (v_x a) - \lambda_Y a + \lambda_{sr} \{ C + \frac{1-f}{f} \rho q \} \dots\dots\dots (5-20)$$

- ここに、 C, a : 各々地下水中の $^{90}\text{Sr}, ^{90}\text{Y}$ 濃度
- q : ^{90}Sr の土壤中濃度
- kd : ^{90}Sr の分配係数
- f, ρ : 地層の空隙率および土壤の密度
- λ_{sr}, λ_Y : 各々 $^{90}\text{Sr}, ^{90}\text{Y}$ の崩壊定数
- v_x, D_x : 地下水の流速, および拡散係数

となる。式(5-19)と式(5-20)とを連立して解くと、 ^{90}Sr の移動の先行指標として ^{90}Y が有効か否かを判断することができる。ここでは簡単のため仮に $\rho = 2.65 \text{ g/cm}^3$, $f = 0.4$, $v_x = 30 \text{ cm/day}$, $D_x = 1 \text{ cm}^2/\text{sec}$ として、上式を解くことにする。計算結果の一部を図-5.6, 図-5.7に示す。図中の核種濃度 $C(x, t)$ は核種が地中へ漏出する位置の濃度を $C_0(x=0, t=0)$ とし、 C_0 に対する相対濃度で示されている。

^{90}Y を ^{90}Sr の移動に対する先行指標として用いることができるための条件は次の2つである。すなわち、① ^{90}Y の濃度が ^{90}Sr の濃度より大きい(ただし、 ^{90}Sr の濃度は定量限界濃度より小さい)、② ^{90}Y の濃度は定量限界濃度より大きい。

後者の条件は、処分場に処分する廃棄物の量や処分の方式等によって異なるためここでは具体的に検討することができない。ここでは仮に、処分場直下の地下水中の ^{90}Sr および ^{90}Y の濃度を $C_0 = 1 \mu\text{Ci/ml}$ 、 ^{90}Y の定量限界濃度は ^{90}Sr と等し

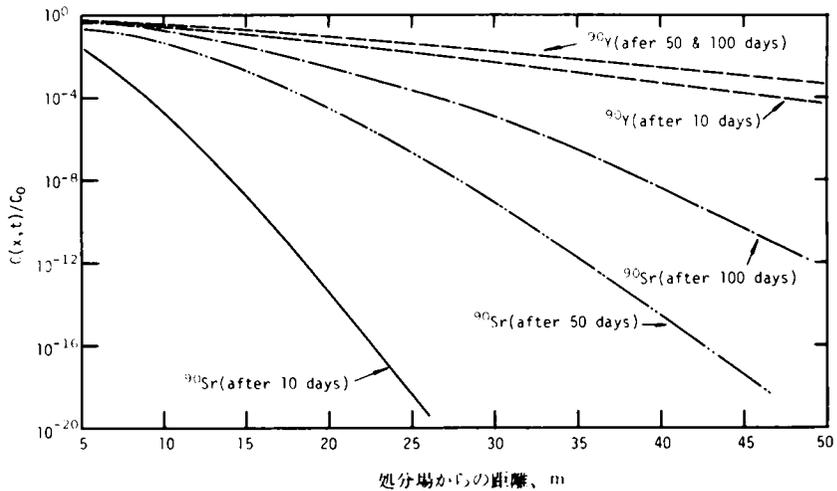


図-5.6 地下水中の $^{90}\text{Sr}, ^{90}\text{Y}$ 濃度の変化 ($kd_{sr} = 10 \text{ ml/g}$ の場合)

いと仮定して、 $2 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ ⁽³⁰⁾と考える。すなわち、図-5.6、図-5.7において、濃度比 C/C_0 がほぼ 10^{-8} 以下の場合には、 ^{90}Sr 、 ^{90}Y とも測定できないことを想定したことになる。①の条件を満たす領域（位置と時間による領域）は ^{90}Sr の分配係数值によって変化する。例えば図-5.7によれば処分場から10m下流側の位置で、 ^{90}Sr の分配係数值が $50\text{ml}/\text{g}$ のとき、 ^{90}Sr の濃度が定量限界濃度に等しくなるのは約20日後、分配

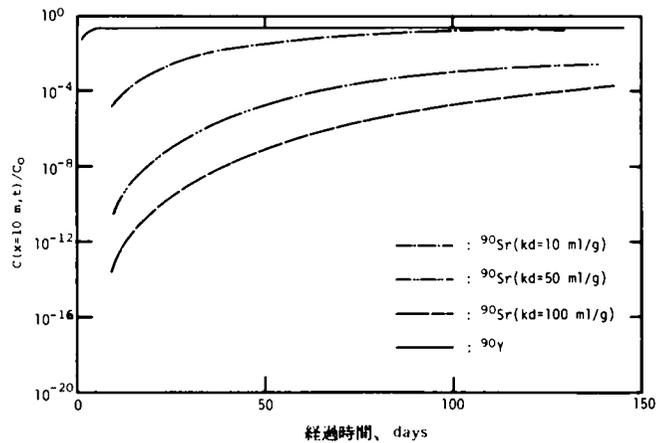


図-5.7 地下水中の ^{90}Sr 、 ^{90}Y 濃度の変化
(流下距離が10 mの場合)

係数值が $100\text{ml}/\text{g}$ のときは約40日後である。すなわち、処分場から10mの位置に地下水モニタリング用の井戸を設置すれば、 $kd = 50\text{ml}/\text{g}$ のときは約20日間、 $kd = 100\text{ml}/\text{g}$ のときは約40日間その井戸で ^{90}Y を測定することによって ^{90}Sr の移動を予知することができる。この日数の後は ^{90}Sr の濃度が定量限界濃度より大きくなるから ^{90}Sr 濃度を測定する方が有効である。それ故、モニタリング井戸を処分場から10m離れた位置に設置するとき、仮に当該処分場の土壌の ^{90}Sr に対する kd 値が $50\text{ml}/\text{g}$ であれば、廃棄物の処分後約20日間はモニタリング井戸は ^{90}Y を検知することによって ^{90}Sr の移動を予知する目的に使えることになる。20日経過後は ^{90}Sr も測定可能になるから、本試算例では ^{90}Y を測定することによって ^{90}Sr の到達よりもほぼ20日は早く、 ^{90}Sr の到達を予知できることになる。この日数は $kd = 100\text{ml}/\text{g}$ の場合は約40日である。

^{90}Y を ^{90}Sr の移動の先行指標として有効に利用できる範囲を整理して図-5.8に示す。図-5.8で当該 kd_{Sr} 値に対応する2本の曲線ではさまれる部分が有効な範囲である。上側の曲線で与えられる境界は ^{90}Y 濃度が定量限界濃度($10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{ml}$)に等しくなる場合に、下側の境界は ^{90}Sr 濃度が定量限界濃度に等しくなる場合に相当する。後者の境界の下部ではモニタリング井戸は ^{90}Sr を検知するための井戸に性格が変わることになる。例えば $kd_{\text{Sr}} = 10\text{ml}/\text{g}$ の場合、処分場から30m離れた位置にあるモニタリング井戸は約50日間は ^{90}Y のみを、50日以後は ^{90}Y と ^{90}Sr の双方を検知することが

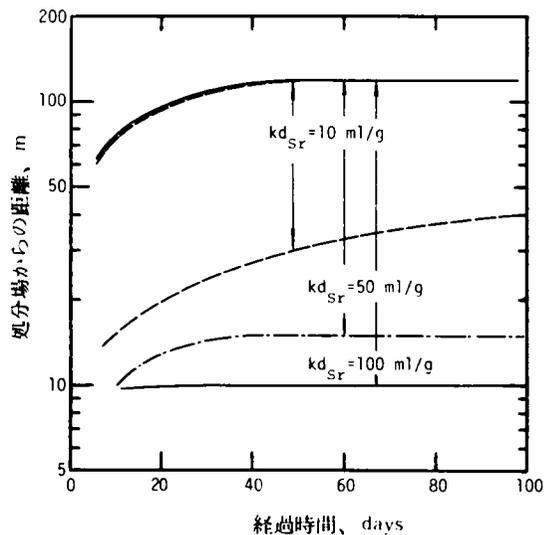


図-5.8 ^{90}Y が先行指標として有効な範囲

きる。つまり、このモニタリング井戸で ^{90}Y が先行指標としての役割を果たせるのは約50日ということになる。ところで ^{90}Y は土壌によって吸着されないのに対し、 ^{90}Sr は吸着保持されるから定量限界濃度の両核種の移動距離は ^{90}Y が ^{90}Sr より大きく、それぞれ一定限界距離以遠には到達しない。それ故、モニタリング井戸の設置位置によっては ^{90}Y を検知してもその後 ^{90}Sr がその場所で検知できないことがある。例えば、処分場から30m離れた位置にあるモニタリング井戸では、 $k_{d,\text{sr}}=50\text{ml/g}$ であれば、 ^{90}Y は検知できるが ^{90}Sr は検知できない。 $k_{d,\text{sr}}=50\text{ml/g}$ の場合の定量限界濃度の ^{90}Sr はほぼ15mより遠くへは移動しないからである(図-5.8参照)。図-5.8の ^{90}Y の先行指標としての有効範囲には、このような範囲(^{90}Y が検知されてもその後 ^{90}Sr が検知されない範囲)が含まれているため、有効範囲は $k_{d,\text{sr}}$ 値が大きくなるにつれて広がっている。このような範囲を除いて考えると、有効範囲は $k_{d,\text{sr}}$ 値が大きくなるにつれて逆に狭くなる。

^{90}Y は土壌に収着されない($k_d=0$)から、土壌をモニタリング項目に選ぶことはできない。以下に述べる物質についても、それが土壌に収着されない場合は地下水をモニタリング項目に選定することを暗黙の内に想定することにする。

5.4.2 Ca + Mg 濃度の利用

放射性廃棄物をセメント固化して地中に埋設すると、雨水浸透水や地下水が固化体に接触して水中のCa + Mg濃度が増加する。通常の地下水層中では土壌と地下水との間でCa + Mg濃度は平衡状態にあるから、新たにCa + Mgが地下水層に供給されてもCa + Mgは地下水層中を比較的速く移動する。ただし、地下水中のCa濃度が過飽和になるとCaは化学的に沈降する(この反応は鋭敏ではない)からCaの移動速度は地下水そのものの移動速度に比べると、やや遅くなるのが普通のものである(図-3.18参照)。建築廃材等のコンクリート塊を多量に埋設した廃棄物処分場の下流側では実際にCa + Mgの高濃度域が検知されている。⁽³⁴⁾それ故、廃棄物をセメント固化して直接に地中に埋設する場合には、地下水中のCa + Mg濃度の増加を核種移動の先行指標として用いる可能性がある。ただし、その有効性を評価するためには化学変化を起しつつ移動するCa + Mgの地中移動を定量化する必要がある。

5.4.3 pH の利用

廃棄物のセメント固化体が水に接触すると、固化体からアルカリ分が浸出して水中のpH値は大きくなる。アルカリ分は土壌によってほとんど収着されないから、地層中をほぼ地下水と同速度で移動する。ただし、アルカリ分の土壌粒子との化学反応等解明されていない現象が多く残されている。実地層において、地下水中のpH異常を核種移動の先行指標にできるか否かは検討の余地がある。実際、非放射性廃棄物の埋設処分場周辺地下水中で明確なpH異常が検知される例は稀である。ただし、第3章7節で検討したように、通気層中での核種移動の先行指標としては利用できる可能性がある。

5.4.4 陰イオン(塩素イオン)の利用

廃棄物をセメント固化せずに地中に埋設すると、廃棄物が腐食・分解して、腐食有機酸や種々の陰イオンが生成される。非放射性廃棄物の埋立処分場ではこれらの物質による地下水汚染が検知される

ことが多い。例えば、有機酸（フミン酸）による地下水の着色・着臭，地下水中の Cl^- イオン， SO_4^{--} イオン濃度の増加等である。ここでは，地下水のトレーサーとして塩素イオンを供給する場合をも含め，塩素イオンを核種移動の先行指標として利用する可能性について検討する。

一般に，土壌との吸着反応が認められない物質の地下水層中での移動は，地下水そのものの移動と一致し，その移動を記述する基礎式は，例えば一次元では次のように与えられる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (v_x C) \quad \dots\dots\dots (5-21)$$

2次元輸送拡散方程式を用いて，塩素イオンの地下水層中での移動を予測することができるような地層が現実存在することが確かめられている。⁽¹¹⁾ 三重水素水や染料のようなトレーサーを人為的に投入する場合もトレーサーの移動は上式で記述されることになる。放射性核種，例えば ^{90}Sr の移動に比べると地下水の移動は速いから（図-5.7 参照），塩素イオンが処分した廃棄物に由来するものであることを確認すれば，あるいは適切な方法で塩素イオンを廃棄物層に加えることができれば，核種の先行指標として利用できる可能性は大きい。

5.5 モニタリング網の配置

5.5.1 基本的考え方

放射性廃棄物地中処分場の周辺に配備すべきであると考えられるモニタリング・システムの目的と性格についてはすでに述べた。本節では，モニタリング試料を採取する位置をどのように配置すべきかを検討し，その配置例を示すことにする。本章で考えている処分場周辺のモニタリング計画の概念を整理して図-5.9 に示す。

モニタリング試料の採取位置は，当初はできる限り多くしておき，処分場の操業開始と共に収集されるデータを用いて再配備することが望ましい。当初，モニタリング位置を決定する場合には，種々の方法によって予測された核種の移動状況が極めて重要な役割を果たす。しかしながら，モニタリング・システムは，元来，そのような予測がはずれた場合にも公衆の安全を保証しうるような機能を持つべきものであるから，当初設定したモニタリング位置を固定的に考えることは危険である。モニタリング・システムの信頼度はモニタリング・データによってしか検証することができない。

図-5.9中のPRモニタリング系は，公衆の構成員の居住区域を囲むように配備される。処分場由来する放射性物質がこのモニタリング系によって検知されるのは長期間の後である。それ故，得られるモニタリング・データを用いて，試料の種類や採取位置と合理的に再検討できるのも長期間の後になる。このモニタリング・システムの試料採取は，当面，公衆の構成員の不安を除去することを主目的に実施することになる。先行指標による予知モニタリング系^{*}は，廃棄物処分場を囲む様に配備する。このモニタリング系の目的は，放射性核種が処分場からいつれの方向に移動するかを検知することである。放射性核種の移動方向を検知することができれば，核種の移動方向の局地的な環境特性値を把握して，核種の移動速度，分布域等を推定する。推定した核種の分布域を把握できるようなモニタリング試料の採取位置を予知モニタリング系に一致させ，あるいはその外周に配置する。放射性

* 先行指標物質の移動方向を検知するために，処分場の操業に先立ってその周辺に配備するモニタリング系をここでは特に予知モニタリング系と呼ぶことにする。

核種の地中での移動速度は遅いから、予知モニタリング系によって核種の移動方向が確認された後、第1段の動態モニタリング系を配備するのに要する時間は十分に保障されると思われる。第1段のモニタリング系で核種の移動を確認した後は、さらにその外周に第2段の動態モニタリング系を配備する。このとき、第1段のモニタリング系は第

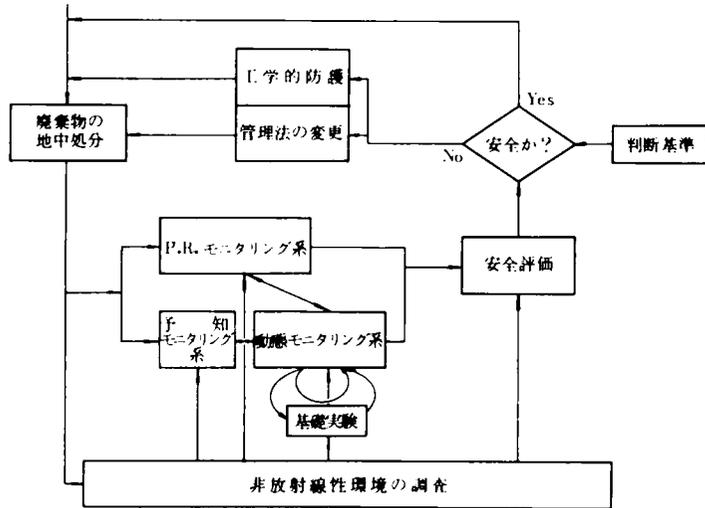


図-5.9 地中処分場周辺のモニタリング計画の概念

2段のモニタリング系に対して、予知モニタリング系としての機能を有し、当初設定した予知モニタリング系はその性格が動態モニタリング系の性格に転化することになる。時間の経過と共に動態モニタリング系は広い区域を対象にするようになり、遂にはP Rモニタリング系の対象範囲と重なるようになるものと考えられる。

本節では、地中処分場の操業に先立って配備することが不可欠な予知モニタリング系を配備する方法について検討する。動態モニタリング系は、第2章で述べた方法によって核種の分布域を推定すれば、例えば図-5.2の例(図中の+印)のように配備することができる。試料採取位置の数は、地中の核種存在量をどの程度の精度で把握するかによって定めることができる。

ここでは、モニタリング系の配備その他の経済性、モニタリング系の信頼性、必要なマン・パワー等に関する詳しい検討は行なわない。予知モニタリング系(図-5.9参照)を導入する基本的なねらいは、先行指標を利用することによって、実際に核種が移動する方向を把握し、その後でその方向に集中的なモニタリング系(動態モニタリング系)を配備する方が、核種が移動すると考えられるあらゆる方向にあらかじめ動態モニタリング系を配備しておくよりも、経済的であろうし、投入経費を同じにすればはるかに信頼度の大きな系を設計することができると考えたからである。放射性核種の地中での移動は、すでに述べたように、大気中での汚染原因物質の移動に比べるとより決定論的であって、しかもその移動経路は時間の経過によってもほとんど変わらないと考えられる。放射性核種が実際に移動する経路は、核種の地中への漏出想定位置や地下水の流況等から推定して移動するであろうと考えられる多くの経路の内、いくつかに限られると考えるのが妥当である。

5.5.2 配置の手法

予知モニタリング系を配備する目的は、先行指標物質を検知することによって放射性核種が処分場からいつれの方向へ移動するかを把握することである。核種の分布を把握することを目的にはしていない。それ故、廃棄物の処分場から一定の距離だけ離れて、処分場の周囲に単列の予知モニタリング

・ラインを設定し、このモニタリング・ライン上を所定の濃度以上の先行指標物質が通過すれば必ず検知できるような体制を整えれば、目的を達成することができる。(38)

放射性核種が地中へ移行する位置から、設定するモニタリング・ラインの位置までの距離を L 、1つのモニタリング位置の検索範囲（先行指標物質の汚染域によって切りとられるモニタリング・ラインの長さ：図-5.10 参照）を $2y_0$ とする。また、先行指標物質（ ^{90}Y を用いることにする）、およびモニタリングの対象核種（ ^{90}Sr とする）が距離 L を移動するのに要する時間をそれぞれ $T_Y(L)$ 、 $T_{Sr}(L)$ 、その後 ^{90}Y 、 ^{90}Sr のモニタ

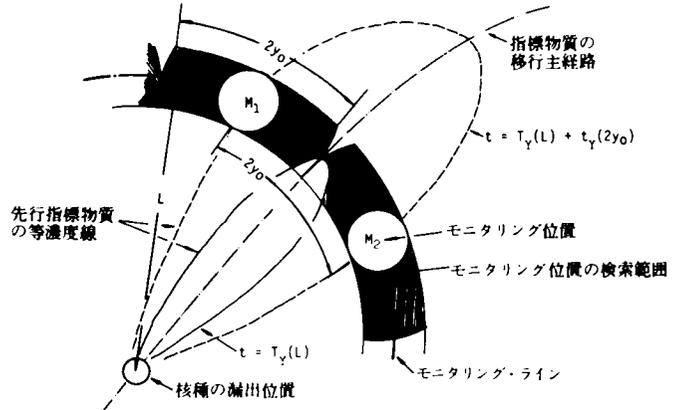


図-5.10 予知モニタリング系のモニタリング位置を決定する手法の概念図

リング・ライン上での分布幅が $2y_0$ になるまでに要する時間をそれぞれ $t_Y(2y_0)$ 、 $t_{Sr}(2y_0)$ とする。予知モニタリング系のモニタリング位置を決定するための手法の概念を整理して図-5.10 に示す。図-5.10 よりわかるように、1つのモニタリング位置の検索範囲を、先行指標物質のモニタリング・ライン上での分布幅、すなわち $2y_0$ に等しく設定すれば、モニタリング・ラインを通過する先行指標物質を検知し損なうことがない。先行指標物質の分布幅は、定量限界濃度で囲まれる先行指標物質の分布域がモニタリング・ラインを切りとる長さとして定めることができよう。

予知モニタリング系によって ^{90}Y を検知するのに要する時間の最小値は $T_Y(L)$ 、最大値は $T_Y(L) + t_Y(2y_0)$ である。同じく予知モニタリング系で ^{90}Sr を検知できるようになる時間の最小値は $T_{Sr}(L)$ 、最大値は $T_{Sr}(L) + t_{Sr}(2y_0)$ である。それ故、 ^{90}Y を検知した後 ^{90}Sr を検知するまでに要する時間の最小値 $T(L)$ は、

$$T(L) = T_{Sr}(L) - \{ T_Y(L) + t_Y(2y_0) \} \quad \dots\dots\dots (5-22)$$

となる。ところで、 $T_{Sr}(L)$ と $T_Y(L)$ との間には近似的に $T_{Sr}(L) = K_f T_Y(L)$ なる関係が成立する。それ故式(5-22)は次式のように変形される。

$$T(L) = (K_f - 1) T_Y(L) - t_Y(2y_0) \quad \dots\dots\dots (5-23)$$

$$\text{ここに、} K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho k d_{Sr}$$

本節で考えているモニタリング・システムは、予知モニタリングで先行指標の ^{90}Y を検知した後、 ^{90}Sr を把握するための動態モニタリング系を配備することを想定している。それ故、動態モニタリング系を配備するのに必要な時間を T_m とすれば、

$$T(L) \geq T_m$$

でなければならない。ところで、モニタリング位置でモニタリングする時間間隔を T_s 時間(等間隔)とすれば、モニタリング位置に ^{90}Y が到達しているのに検知することができない時間の最大値は T_s になる。それ故、動態モニタリング系を配備するために要する時間を保証するためには、

$$T(L) \geq T_m + T_s \quad \dots\dots\dots (5-24)$$

であることを要する。一方、モニタリング・ライン上での ^{90}Y の分布幅 $2y_0$ は定常状態での分布幅 $2Y_0$ よりも大きくはなり得ないから、次の不等式が成立する。

$$y_0 \leq Y_0 \quad \dots\dots\dots (5-25)$$

y_0 は 1 つのモニタリング位置の検索範囲の $1/2$ であるから y_0 を小さく設計すると必要なモニタリング位置の数が多くなる。予知モニタリング系では、廃棄物処分施設の近くでなるべく早く、先行指標物質の移動を把握する必要がある。しかも、経済性(例えば、モニタリング用井戸の設置費等)、分析担当機関の分析能力(容量)等を考えると、モニタリング位置の数は少ないことが望ましい。ここでは式(5-24)、式(5-25)を満たす L の最小値と対応する y_0 の最大値を求めて、予知モニタリング系を設計する。

5.5.3 配置例

第4章6節で放射性廃棄物地中処分場の立地要件を定めるのに用いた敷地に予知モニタリング系を配置する。廃棄物の処分位置およびその周辺の環境因子の値は第4章6節と同じ(図-4.10～図-4.13参照)であるとする。廃棄物地中処分場の安全性を考える上で最も重要な核種は ^{90}Sr であるとし、 ^{90}Sr の移動に対する先行指標として ^{90}Y を用いる。放射性核種は廃棄物処分施設の境界上の1点から地中へ移行すると仮定する。このとき、核種が地中へ移行する、処分施設境界上の位置は不明であるとする。これらの仮定は予知モニタリング系の機能に余裕をもたせる側の誤差を生じる。核種が地中へ移行する位置での ^{90}Sr 、 ^{90}Y の濃度は第4章6節と同じく $1.68 \times 10^{-1} \mu\text{Ci/ml}$ 、両核種の定量限界水中濃度は前節と同じく $10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$ であるとする。

地中(帯水層中)での ^{90}Y の濃度分布を次式で推定する。

$$\frac{\partial a}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial a}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial a}{\partial y} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (v_x a) - \frac{\partial}{\partial y} (v_y a) - \lambda_y a \quad \dots\dots (5-26)$$

$$\text{ここに、} \begin{cases} D_x = D_m |v_x| + D_d \\ D_y = D_m |v_y| + D_d \end{cases}$$

ただし D_m は ^{90}Y の標準拡散係数、 D_d は分子拡散係数である。 ^{90}Y の地下水中濃度 a は厳密には、例えば式(5-19)と式(5-20)とを連立して解いたように、 ^{90}Sr の移動を記述する式と連立し、 ^{90}Sr から供給される ^{90}Y の寄与をも考慮して定めねばならない。ところが ^{90}Sr の地下水と土壌との間の分配係数値 kd_{sr} が大きい場合には式(5-26)によって ^{90}Y の分布を推定しても生じる誤差は小さい。式(5-26)の解法(図-4.17参照)および環境因子の値は前章第6節の標準状態(表-4.23参照)と同じである。 ^{90}Sr および ^{90}Y が処分施設の想定上の位置 $(I, J) = (81, 21)$ から漏出した場合の、 ^{90}Y の地下水中濃度分布の計算例を図-5.11に示す。また、同じく位置(81, 21)から ^{90}Y が地中へ

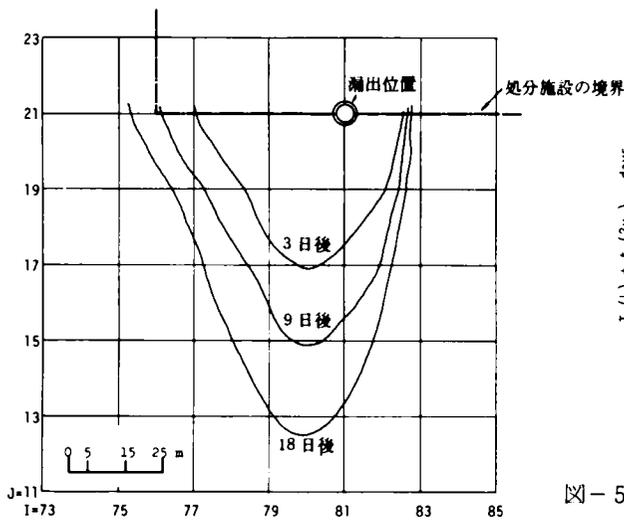


図-5.11 ^{90}Y の地下水中等濃度線 (定量限界濃度: $10^{-8}\mu\text{Ci}/\text{ml}$)

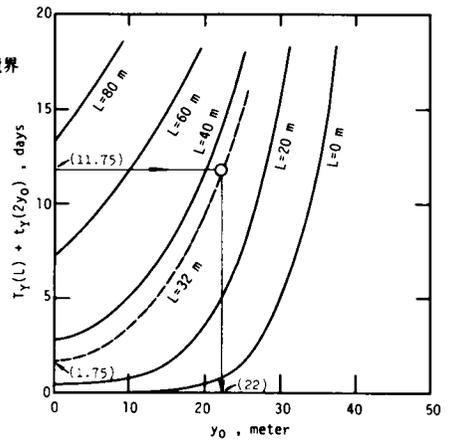


図-5.12 $T_Y(L) + t_Y(2y_0)$ と y_0 との相関 ($T_Y(L) + t_Y(2y_0)$: ^{90}Y の分布域がモニタリング・ライン上で $2y_0$ になるのに要する時間)

漏出する場合の、 $T_Y(L) + t_Y(2y_0)$ と y_0 との相関を図-5.12に、 $T_Y(L)$ と L との相関を図-5.13に示す。

式(5-23)および式(5-24)より、 $T_Y(L)$ は次の関係式を満たさねばならない。

$$T_Y(L) \geq \frac{1}{(K_f - 1)} \{ T_m + T_s + t_Y(2y_0) \} \quad \dots\dots\dots (5-27)$$

T_m および T_s は、当該計画に投入できる資金や人員によって定まり、 K_f は地層が定まれば定まる。

ここでは $T_m = 30$ 日、 $T_s = 30$ 日、すなわち30日毎に地下水中の ^{90}Y 濃度を測定し、定量限界濃度以上の ^{90}Y を検知した後、 ^{90}Sr のモニタリング体制を整えるのに30日を要するとする。また、ここでは仮に $kd_{sr} = 10\text{ml}/\text{g}$ とすれば、 $K_f = 40$ となる($f = 0.4$, $\rho = 2.65\text{g}/\text{cm}^3$)。それ故、式(5-27)は、

$$T_Y(L) \geq \{ 30 + t_Y(2y_0) + T_s \} / 39$$

となる。 $t_Y(2y_0)$ をパラメータにして上式を計算し、その結果を図-5.14に示す。

予知モニタリング系は、 ^{90}Y が地中へ移行する各想定位置において L と y_0 とを定めれば設計することができる。図-5.12からわかるように処分施設の境界($L = 0$)からモニタリング・ラインまでの距離 L が小

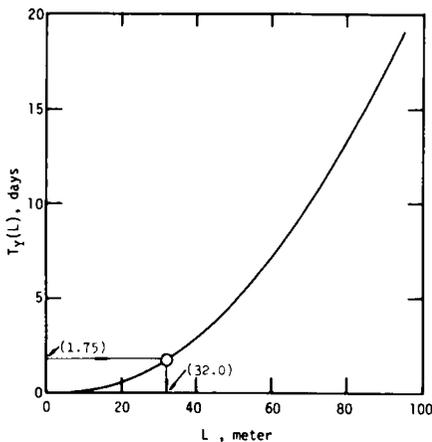


図-5.13 $T_Y(L)$ と L との相関 ($T_Y(L)$: ^{90}Y がモニタリング・ライン L に達するのに要する時間)

さくなれば、当該モニタリング位置の検索範囲($2y_0$)も大きくなる。すなわち、処分施設のより近くに、より少ないモニタリング位置を設計することによって予知モニタリングの目的を達成することができる。ここでは式(5-25)と式(5-27)を満たす L の最小値と y_0 の最大値とを定めることにする。定めるべき設計変数が2つ、条件式が2つであるから L および y_0 は簡単に定めることができる。ところが

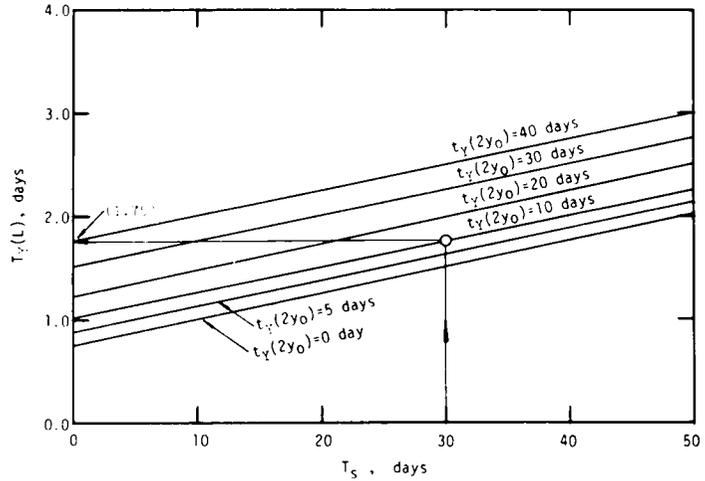


図-5.14 $T_Y(L)$ と T_S との相関 (T_S : サンプルング時間間隔)

式(5-25)によれば y_0 の最大値は Y_0 であるが、これは現実的には意味がない。なぜなら、 ^{90}Y は地下水層中を移動する ^{90}Sr からも供給されるから、 ^{90}Y が平衡分布に達する($y_0=Y_0$ となる)のは ^{90}Sr が平衡分布に達した後であり、そうなるまでには無限の時間が必要である。しかも ^{90}Sr が平衡分布に達した場合の値 Y_0 を用いて予知モニタリング系を設計することは、放射性核種の移動(非定常過程)を把握するというモニタリング本来の目的に反することになるからである。ここでは、放射性核種が地中へ移行する位置以外では ^{90}Y が供給されない場合、すなわち ^{90}Y の濃度分布が式(5-26)によって定まる場合の、 ^{90}Y の平衡分布幅 Y'_0 を用い、 $y_0 \leq Y'_0$ であることを式(5-25)に代る制約として y_0 を定めることにする。 y_0 を小さくすると予知モニタリング系が ^{90}Y を検知する能力の余裕が $2(Y'_0 - y_0) \geq 0$ に相当する分だけ大きくなる。

放射性核種が、廃棄物処分施設の境界上の位置(81,21)から地中へ移行する場合(図-5.11参照)を例にして、 L と y_0 とを定めよう。ここでは地下水のモニタリング頻度を1月1回、すなわち $T_S=30$ 日としている。さらにモニタリング・ライン上での ^{90}Y の分布幅が $2y_0$ になるのに要する時間 $t_Y(2y_0)$ を、仮に10日とする。この場合には図-5.14から、 ^{90}Y がモニタリング・ラインに達するのに要する時間 $T_Y(L)$ は1.75日になる。 $t_Y(2y_0)$ を大きく選ぶと以下に述べるように y_0 は大きくなるが、 $y_0 \leq Y'_0$ であることを要するから、 $t_Y(2y_0)$ をむやみに大きく選ぶことはできない。ついで図-5.13によれば、 $T_Y(L) = 1.75$ 日に対応する、モニタリング・ラインの位置 L は32mとなる。今 $t_Y(2y_0) = 10$ 日、 $L = 32$ mであるから、 $T_Y(L) + t_Y(2y_0) = 11.75$ 日、 $L = 32$ mに対応する y_0 値は、図-5.12より22mとなる。すなわち、放射性核種の地中への漏出位置が(81,21)である場合、 $t_Y(2y_0) = 10$ 日とすれば、 $L = 32$ m、 $y_0 = 22$ mとなる。 $t_Y(2y_0) = 20$ とすれば、先と同じ手続きを繰返すことによって、 $L = 35$ m、 $y_0 = 27$ mとなる。すなわち、 $t_Y(2y_0)$ を大きくしても、 y_0 はあまり変わらない。廃棄物処分施設境界上の他の位置から核種が地中へ移行する場合についても同様の検討を行ない、その結果を整理して表-5.4に示す。表-5.4のように L と y_0 とを定めれば、このモニタリング・ライン上に ^{90}Y が到達するのに要する時間 $T_Y(L)$ は1.75日、モニタリング・ライン上での ^{90}Y の分布幅が $2y_0$ になるのに要する時間 $t_Y(2y_0)$ は10日、モニタリング位置で ^{90}Y を検出するのに要する時間

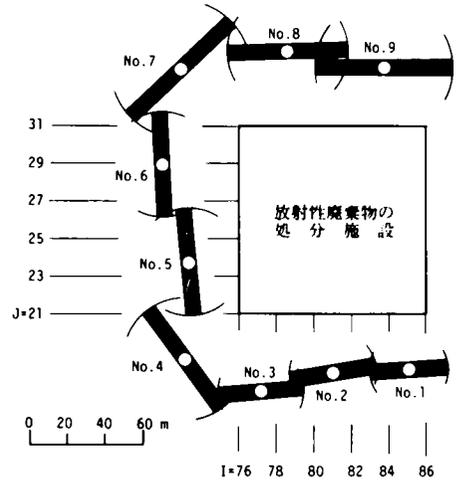
の最大値 $T_Y(L) + t_Y(2y_0) + T_s$ は 41.75 日, 最小値は $T_Y(L) = 1.75$ 日, また ^{90}Y を検知後 ^{90}Sr がモニタリング・ラインに達するまでに必要な時間 $T_m = T(L) - T_s$ はほぼ 30 日 (29.6 日) となる。

表-5.4 ^{90}Y の地下水中濃度分布から推定した L と $2y_0$

| 核種の漏出想定位置 | (86,21) | (81,21) | (76,21) | (76,26) | (76,31) | (81,31) | (86,31) |
|----------------------------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| モニタリング・ラインまでの距離 (L :m) | 29 | 32 | 40 | 27 | 44 | 38 | 31 |
| モニタリング位置の検索範囲 ($2y_0$:m) | 42 | 44 | 62 | 62 | 70 | 68 | 74 |

設計条件: $t_Y(2y_0) = 10$ days, $T_m = 30$ days, $T_s = 30$ days

表-5.4 に示した L と y_0 とを用いて, 配置した地下水中 ^{90}Y 濃度のモニタリング位置を図-5.15 に示す。 $I = 86 (21 \leq J \leq 31)$ で与えられる処分施設の境界から地中に移行する核種は, 地下水と共に処分施設の内側へ向って移動するから, この境界の外側にはモニタリング位置を配置する必要はない。各モニタリング位置の廃棄物処分施設境界からの距離 (L) と, 各モニタリング位置の検索範囲 ($2y_0$) を整理して表-5.5 に示す。図-5.15 中の○印はモニタリング位置を示しており, 斜線部分はモニタリング位置の検索範囲を表わしている。



○印はモニタリング位置を, 斜線部は検索範囲を示す。

図-5.15 予知モニタリング系モニタリング位置の配置例

(設計条件他は表-5.5 参照)

表-5.5 予知モニタリング系のモニタリング位置とその検索範囲

| モニタリング位置の番号 | No.1 | No.2 | No.3 | No.4 | No.5 | No.6 | No.7 | No.8 | No.9 |
|--------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| モニタリング・ラインまでの距離 (L) | 29 | 32 | 41 | 40 | 26 | 39 | 44 | 40 | 31 |
| モニタリング位置の検索範囲 ($2y_0$) | 43 | 44 | 43 | 62 | 54 | 57 | 70 | 63 | 74 |

設計条件: $t_Y(2y_0) = 10$ days, $T_s = 30$ days, $T_m = 30$ days

$T_Y(L) = 1.75$ days, $K_f = 40$ ($k_{dSr} = 10$ ml/g)

長さの単位は meter

5.5.4 考 察

先行指標物質に ^{90}Y を用いる場合を想定して、種々の仮定の下に予知モニタリング系のモニタリング位置を配置した(図-5.15)。モニタリング位置の数は9である。廃棄物処分施設で ^{90}Sr が地中へ移行すれば、所定の時間の後には、先行指標である ^{90}Y がいつれかのモニタリング位置で検知されることになる。図-5.15の予知モニタリング・システムの設計条件は以下のとおりであった。すなわち、測定頻度は30日毎に1回、モニタリング位置で ^{90}Y を検知するための動態モニタリング系を配備するまでに要する時間は30日、モニタリング・ライン上で ^{90}Y が検知されるのは、廃棄物から浸出した ^{90}Y が処分施設の境界に達した後遅くとも約42日後($T_Y(L) + t_Y(2y_0) + T_s$ 時間後)である。

予知モニタリング系に必要な試料採取位置の数は図-5.15に示すように多くなる。実際に ^{90}Y が検知されるのは、これらのモニタリング位置の内ただか数箇所に限られると思われる。それ故、処分施設の周囲に例えば ^{90}Sr の移動を把握するためのモニタリング網をあらかじめ配備するよりは、予知モニタリング系によって ^{90}Sr の移動方向を把握した後、その付近に重点的に ^{90}Sr のモニタリング網を配備する方が、経済的にはるかに有利であろうと思われるだけでなく、用いる資金を同じにすればはるかに有効なモニタリング網を配置できることにもなる。

予知モニタリング系のモニタリング位置の数が多くなること、測定器の購入費や維持管理費が高価になるであろうことを予想して、モニタリング位置における地下水中放射性核種の連続自動測定方式($T_s = 0$ に相当)については検討しなかった。放射性核種の地中での移動速度は遅いから、連続自動測定方式を用いなくてもモニタリングの目的は達成できると考えられる。ただし、図-5.14からも解るように、 $T_Y(L) = 1.75$ 日であっても $T_s = 0$ (連続測定に対応)であれば $t_Y(2y_0) = 40$ 日とすることができる。図-5.13より $T_Y(L) = 1.75$ 日に対応する L の値はやはり32mであるが、図-5.12より $L = 32$ m、 $T_Y(L) + t_Y(2y_0) = 41.75$ 日に対応する y_0 値は22mよりはずっと大きく30数m近くになるとと思われる。このことは、地下水中の ^{90}Y 濃度を連続測定することが技術的に可能になれば、モニタリング位置の数を減じることができる可能性があることを意味する。連続測定の必要性和利害得失については別に検討する必要がある。

廃棄物処分施設内でのモニタリングについては検討しなかった。予知モニタリング系の他に、例えば、処分用構造物(トレンチ、コンクリート・ピット、建屋等)のサンプ(水溜)等で、廃棄物から浸出する放射性核種を把握することができれば望ましい。

予知モニタリング系のモニタリング位置は、地下水の止水壁等を構築して地下水の移動を規制できれば大幅に減少する。このような工法の有効性と実用性についても検討する必要がある。

5.6 ま と め

本章では、現在各国で実施されているモニタリングの現状を紹介すると共に、非放射性物質の処分に伴って生じる地圏環境の汚染の持徴を明らかにした。放射性廃棄物地中処分場周辺に配備すべきモニタリング・システムが持つべき性格を明らかにし、モニタリング・システムを設計する場合の基本的考え方を述べた。

モニタリング・システムは、あくまで現場で得られるデータを基礎にして設計するべきであると考える。考えられる種々の事例を想定し、廃棄物処分場の操業に先立って、あらかじめモニタリング網

を配備しておくよりは、漸時得られるデータに基づいてモニタリング・システムを再構成する方が経済的にも技術的にも有利であると考えられるからである。そのためには、あらかじめ配備しておくモニタリング網は必要最小限度にとどめておく必要がある。そのためモニタリング・システムの維持・管理は努めて弾力的に行なう必要がある。放射性核種の地中での移動速度は遅いから、モニタリング網の再構成を検討するために必要な時間は、核種が地中へ漏出した後であっても、十分に保証されると思われる。

廃棄物地中処分場周辺のモニタリング網を完成させるためには、モニタリング項目、モニタリング位置、モニタリング頻度等を定めるだけでなく、モニタリング・データを評価して必要な対策を講じる手順をも準備しなければならない。本章では、限られた条件下でモニタリング項目を選定する考え方と、モニタリング位置を定める考え方について検討するのにとどめた。モニタリング位置の選定についてはその選定例を示した。本章で示したモニタリング・システムの構成手順は、(1)放射性物質の地中での移動特性に注目し、先行指標物質を検知の対象にする予知モニタリング系を廃棄物処分施設の周辺に配置し、(2)予知モニタリング系で先行指標物質を検知した後、その周辺に当該放射性核種の地中での分布域を同定・把握するための動態モニタリング系を配置し、併せて(3)公衆の構成員の安全を保証することを主目的としたPRモニタリング系を人の居住区域の周辺に配置すること、を骨子にしている。すでに明らかなように、本章のモニタリング・システム(図-5.9参照)では、特に初期のモニタリングにおいて、先行指標物質の果す役割が極めて大きい。本章では ^{90}Y を先行指標物質にすることを想定した。現実には ^{90}Y を先行指標に用いることができるか否かは、更に詳しく検討しなければならない。 ^{106}Ru のような放射性核種を用いる方が実用的であるかもしれないし、 $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度や腐食有機酸のような非放射性物質を用いる方が実用的であるかもしれない。但し、先行指標を用いて予知モニタリング系を構成する方法や、予知モニタリング系のモニタリング位置を配置する方法等は、先行指標物質が変わっても、有効性を失なわないと考えられる。

深海投棄処分の場合と異なり、廃棄物を地中に処分する場合には“意味のある”モニタリングを実施することができる。それ故、地中処分法の場合には、廃棄物を処分した後であっても、必要になればそれを再び人の管理下におくことが可能である。“処分する”という行為と“管理下におく”という行為とは、一般的には矛盾する行為ではあるが、人類の安全を保障することを目的にする場合にはそれらを適用する時をずらすことによって、互いに補完的な行為に転化することができる。モニタリングが可能であるということとモニタリングを実施することとは同義ではない。モニタリングの必要があるか否か、どの程度のモニタリングが必要かは処分の事例に応じて定めねばならない。

本章で検討した、地中処分場周辺のモニタリング・システムに関する検討は、検討すべき事項のほんの一部を占めるにすぎない。モニタリング・データを評価する基準や体制、あるいはその結果どのような対策を講じるべきかを決定する手順等、検討すべき事項は大部分残されているといえる。

参 考 文 献

- (1) ICRP : 放射性物質の取扱いに関する環境モニタリングの諸原則, ICRP Publ. 7, (1965),
日本アイソトープ協会訳
- (2) Preston, A.: Site evaluations and the discharge of aqueous radioactive wastes from civil nuclear power stations in England and Wales, Proc. of a symp., Vienna, IAEA, SM-72/46, pp.725-737, (1966)
- (3) IAEA: Methods of surveying and monitoring marine radioactivity, IAEA safety series No.11, (1965)
- (4) Neal, W.T.L.: The United Kingdom approach to environmental monitoring in relation to the discharge of radioactive wastes, Proc. of a symp., Vienna, FAO/IAEA/WHO, pp.345-356, (1969)
- (5) Neal, W.T.L.: An historical review of local monitoring for the contamination of land through disposal to the atmosphere, *ibid*, pp.339-344, (1969)
- (6) Honstead, J.F.: Mechanism of transfer of radionuclides to man in the vicinity of a nuclear facility, *ibid*, pp.381-391, (1969)
- (7) Preston, A.: Aquatic monitoring programmes, *ibid*, pp.345-356, (1969)
- (8) ENEA: 西ヨーロッパにおける放射性廃棄物管理の実際, NSRA-memo No.19, (1972),
原子力安全研究協会訳
- (9) 市川竜資: 環境放射能安全をめぐる諸問題, 原子力工業, 19(9), 26~30, (1973)
- (10) Mitchell, N.T.: Monitoring of the aquatic environment of the United Kingdom and its application to hazard assessment, Proc. of a symp., Vienna, FAO/IAEA/WHO, SM-117/20, pp.449-462, (1969)
- (11) 井上頼輝・森澤真輔, 山口泰正: 廃棄物の陸上埋立に起因する地下水汚染の現状と将来予測,
第11回衛生工学研究討論会講演論文集, pp. 47~52, (1975)
- (12) 井上頼輝・森澤真輔: 地下水の汚染 — その実態と傾向, 公害と対策, 10(9), 11~22
(1974)
- (13) 井上頼輝・森澤真輔: 埋立計画における水質汚染のアセスメント, 土木学会土木計画学講習会
テキスト, pp. 119~133, (1975)

- (14) 井上頼輝・森澤真輔：廃棄物埋立場から地水圏環境へ移行する重金属量の推定，文部省科学研究費総合研究報告書(A) №035032，pp. 11～18，(1976)
- (15) 井上頼輝・赤木文行：山間部への都市廃棄物埋立による地下水の汚染について，水処理技術，14(8)，801～812，(1973)
- (16) 角川正義：原子炉災害対策用野外放射線監視システムに関する考察，JAERI report_1193，(1971)
- (17) 原子力安全研究協会：固体廃棄物処理処分専門委員会昭和46年度成果報告書，(1972)
- (18) 原子力委員会：環境安全専門部会，環境放射能分科会報告書，(1974)
- (19) 池田有光：都市域における大気汚染濃度予測に関する研究，京都大学博士学位論文，(1974)
- (20) 池淵周一：河川流況の長期的予測に関する水文学的研究，京都大学博士学位論文，(1971)
- (21) 日本環境衛生センター：廃棄物の埋立処分に関する技術の開発研究報告書，(1976)
- (22) Mawson, C.A.: Consequences of radioactive disposals into the ground, Progress in Nuclear Energy, Series 12, Health Physics, pp.461-479, (1969), Pergamon Press
- (23) Meyer, G.L.: Preliminary data on the occurrence of transuranium nuclides in the environment at the radioactive waste burial site Maxey Flats, Kentucky, Proc. of a symp., San Francisco, IAEA/ERDA, (1975)
- (24) 原子力安全研究協会：固体廃棄物処理処分専門委員会昭和49年度成果報告書，(1975)
- (25) 日本原子力学会：環境被曝線量評価，(1975)
- (26) 植松甲之介：環境放射能モニタリング，環境放射能研究会夏期セミナー資料，(1974)
- (27) 原子力安全研究協会：固体廃棄物処理処分専門委員会昭和47年度成果報告書，(1973)
- (28) Brown, D.J.: Migration characteristics of radionuclides through sediments underlying the Hanford reservation, Proc. of a symp., Vienna, IAEA/ENEA, SM-93/16, pp.215-228, (1967)
- (29) 井上頼輝・赤木文行：フッ素による地下水の汚染について，用水と廃水，14(11)，34～47，(1972)
- (30) Denham, D.H.: Radiological status of the groundwater beneath the Hanford project, BNWL-1047, (1968)
- (31) Inoue, Y. and Kaufman, W.J.: Prediction of movement of radionuclides in solution through porous media, Health Physics, Vol.9, pp.705-715, (1963)

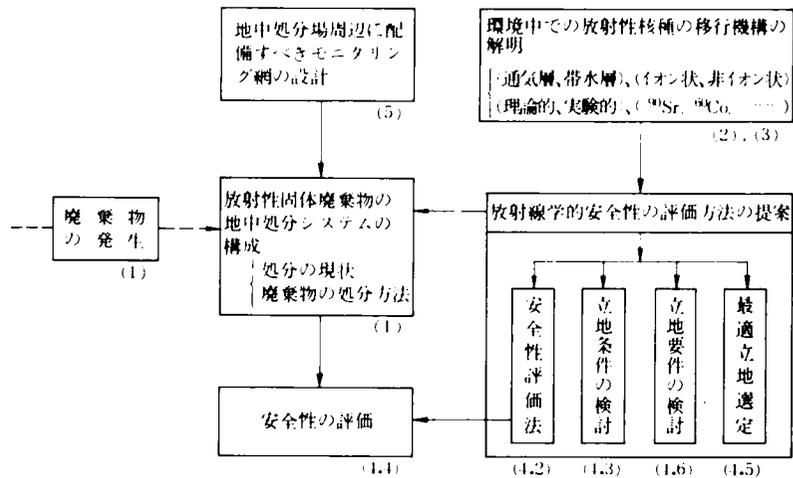
- (32) 井上頼輝・森澤真輔・宮武法善：非イオン状⁹⁰Yの地中移動，日本原子力学会誌，18(7)，445～451，(1976)
- (33) Godse, V.B. et.al.: Characterization of Trombay soils for disposal of radioactive waste, Proc. of symp., IAEA, SM-93/21, pp.301-315 (1967)
- (34) 日本環境衛生センター：廃棄物の埋立処分技術の開発研究報告書，(1974)
- (35) 井上頼輝・森澤真輔・馬原保典：通気層における放射性核種の移動(Ⅱ)，日本原子力学会誌，18(9)，600～605，(1976)
- (36) Robertson, J.B. et.al.: The influence of liquid waste disposal on the geochemistry of water at the NRTS, Idaho, UC-70, IDO-22053, TID-4500, (1974)
- (37) Robertson, J.B.: Digital modeling of radioactive and chemical waste transport in the Snake River plain aquifer at the NRTS, Idaho, UC-70, IDO-22054, TID-4500, (1974)
- (38) 角川正義：環境放射能の監視システムに関する基礎的研究，京都大学博士学位論文(1975)

第6章 結 論

6.1 本研究の総括

本論文の主要部分は5章からなる。本論文では原子力発電所から発生する放射性固体廃棄物を陸上で処分する場合を想定し、主として人に対する放射線学的安全性を確保する立場から、放射性廃棄物を安全に地中処分する方法について論じた。すなわち、環境（主として地圏）中に漏出した放射性核種の環境中での移行機構について理論的・実験的に研究し、その成果を利用して放射性廃棄物を地中処分する場合の安全性評価法を提案した。廃棄物地中処分場として望ましい立地条件を定量的に明らかにし、廃棄物処分場を最適立地させる手法とその適用例を示した。さらに、立地した処分場が、将来にわたって、周辺住民に対する安全を保証するために必要な立地要件の設定方法とその設定例を示した。我国および諸外国の原子力施設の安全性に関する調査を実施し、我国における放射性廃棄物地中処分の実用可能性を検討した。最後に、廃棄物地中処分場周辺に配備すべきモニタリング網について検討し、その配備例を示した。本論文で検討した事項は、放射性固体廃棄物の地中処分システムを、放射線学的安全性を重視する立場から、構成する場合に有効な知見を与えると考えられる。本論文の構成は大略、図-6.1に示す通りである。図中の矢印は検討成果が利用される方向を、()内の数値は検討した章・節を示している。

検討の結果については各章および節毎に詳しく整理して示した。ここでは、それら検討結果の内主要なものを整理して示す。本研究の成果は重金属等を含む非放射性廃棄物を陸上で安全に処分する方



(矢印は成果の利用方向を、()内の数値は検討した章・節を示す)

図-6.1 本論文の構成

法を開発する場合にも有効に適用することができる。

第1章では、原子エネルギーが将来のエネルギー源として重要であることを述べ、さらに将来のエネルギー源としての地位を確立するためには、まず放射性廃棄物の安全な処分方法を開発する必要があることを述べた。放射性廃棄物の種々の処分方法の現状および将来の実用可能性等を紹介した。現在の技術水準で実用可能な廃棄物の処分方法は海洋処分法と地中処分法とであることを示し、諸外国

がどのような処分方針を採用しているかを紹介した。特に地中処分法については廃棄物の種類や放射能レベル毎にどのような処分方法が実用されているかを示した。我国の放射性廃棄物の蓄積量は年々増加の一途をたどり、原子力発電所等では年々廃棄物の保管設備が増設されている。廃棄物圧力が今後ますます大きくなるという理由だけでなく、現在の原子力発電技術を閉じたエネルギー技術にするためにも、特に廃棄物処分問題を解決する必要があることを示して、本論文の目的を設定した。

第2章では、主としてイオン状態で存在する放射性核種が、地中を移動する機構を記述する理論について検討した。本章で行なった検討内容はほぼ2つに区分することができる。第1の検討は、土壌と地下水とが相対的に運動しない系（バッチ・システム）における放射性核種の分配現象をとり扱っている。人工のイオン交換樹脂によるイオンの交換現象について展開された理論を簡略化し、土壌と地下水とが作る系内における放射性核種の分配現象を記述するのに適用した。さらに、放射性廃棄物地中処分の安全性を評価する場合に重要な分配係数値の工学的意味を明らかにした。第2の検討は、土壌と地下水とが相対的に運動する、すなわち土壌層中を地下水が移動する系（カラム・システム）における放射性核種の移動を扱っている。まず、帯水層（地下水層）中での放射性核種の移動を記述する理論を紹介した。通気層における放射性核種の移動は、帯水層における放射性核種の移動に比べると未解明の部分が多い。特に、土壌水分の非定常な移動に伴って生じる放射性核種の移動現象に関する研究は遅れている。ここでは、放射性核種の通気層中での移動現象は土壌水分の移動との関連において論じるべきことを述べ、その移動を記述する基礎式を提案した。さらに、提案した基礎式と従来の理論との関係を数学的に明らかにした。

第3章では、放射性核種の地中での移動現象を実験的に検討すると共に、第2章で提案した通気層における放射性核種の移動を記述する基礎式の妥当性を実験的に検討した。まず第2節では、地下水と土壌との間の放射性核種の分配係数値と、環境因子との相関を実験的に明らかにした。本節の検討は、放射性核種の土壌との反応機構を解明することを目的にしたものではなく、分配係数値が環境因子の変化によってどのように変化するかを工学的に予測することを目的にしている。その結果、分配係数値の大小関係が放射性核種の種類によらずほぼ一定であること、分配係数値の変化が Ca 過剰土の場合は地下水中の $Ca + Mg$ 濃度の変化から、 Ca 不足土の場合は pH 値の変化からそれぞれ推定できること、通気層における核種（ ^{90}Sr ）の分配係数値は帯水層における分配係数値よりも大きいと思われること、 ^{90}Y 、 ^{110m}Ag 、 ^{59}Fe 等の核種は土壌と地下水とが作る系内において非イオン状態で存在する可能性があると思われること、等を明らかにした。本論文では研究範囲を、暗黙の内に、放射性核種がイオン状態で存在する場合に限っている。第3節では、非イオン状態で存在する放射性核種が地中をどのように移動するかを、 ^{90}Y を用いて実験的に検討した。限外濾過法によって ^{90}Y の存在状態を確認し、バッチ・システムおよびカラム・システム内で非イオン状 ^{90}Y がどのように移動するかを明らかにした。すなわち、 ^{90}Y の水中での存在状態は pH が低い領域では陽イオン状態で、 pH が高い領域では帯電しない非イオン状態で、また通常の地下水の pH 域では大半の ^{90}Y が非イオン状態で存在すること、非イオン状 ^{90}Y はイオン状の ^{90}Y に比べると土壌に収着され難く、それ故地層中を早く移動すること、等を明らかにした。第4節では、カラム・システムを用いて、地下水中に単一の放射性核種が含まれる場合および複数の放射性核種が含まれる場合に、核種が地層中をどのように移動するかを検討した。単一の核種を含む水道水を土壌カラムに通水することによって、水中で非イオン状態で

存在すると思われた核種 ^{110m}Ag および ^{59}Fe の移動特性が、他の核種の移動特性と著しく異なること、つまり ^{90}Y の場合と同じく ^{110m}Ag , ^{59}Fe のある分率は水道水とはほぼ同速度で土壌カラム中を移動し、残りの分率はイオン状核種と同じパターンの移動特性を示すこと、放射性核種の土壌カラム内の移動速度は、カラムに充填した土壌から水中へ Ca が溶解する傾向にあるか否かによって変る傾向があること、等を明らかにした。また複数の核種を同時に含む水道水を土壌カラムに通水することによって、個々の核種の土壌カラム流出曲線はある条件の下に単一の核種が含まれる場合の流出曲線を重ね合わせることによって得られることを示した。第5節では、帯水層模型実験装置を作製して、より実規模に近い条件下での放射性核種の地中（帯水層）移動について検討した。 ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co 等合計7種類の放射性核種をセメントで固化し、この固化体を模型帯水層中に設置した。帯水層に水道水を供給して、セメント固化体から浸出した放射性核種がどのように地層中を移動するかを3.5年にわたって追跡し、模型地層内の放射性核種（主として ^{90}Sr ）の分布を実測した。第2章で紹介した理論による予測分布と実測分布とを比較して理論の適用性を検証した。この結果、井上の提案した理論によれば地層中での放射性核種の分布を精度よく予測することができること、基礎式を電算機を用いて数値的に解く方法では、予測精度は劣り、局所地層条件の把握等の点で改良すべき余地があること、等が明らかになった。第6節および第7節では通気層模型実験装置を用いて、通気層中での放射性核種の挙動について実験的に検討した。第6節では、通気層に供給される模擬降水中に放射性核種が含まれる場合について、また第7節では通気層中に放射性核種のセメント固化体を埋設し、固化体から浸出する核種が模擬降水と共に模型通気層中を移動する場合について実験した。模型地層内での土壌水分の非定常変化、地層内での土壌水分の分散、地層内での核種（主として ^{90}Sr ）濃度分布等を実測した。第2章で提案した通気層中での放射性核種の挙動を記述する基礎式を、土壌水分の非定常浸透現象を記述する基礎式と共に、電算機を用いて数値的に解くことによって理論濃度分布を得た。実測値と理論予測値とを比較することによって、第2章で提案した通気層での核種の移動を予測するための考え方が、なお検討の余地を多く残しているものの本研究の検討範囲内ではほぼ妥当であることを示した。通気層における放射性核種の移動を予測するための近似法として提案された井上の拡張理論と第2章で示した考え方を数値実験によって定量的に比較し、井上の拡張理論を修正せずを用いる場合に生じる人体に対する放射線学的安全性の評価誤差は安全側の誤差である事を示した。

第4章では、第2章および第3章で得られた成果を利用して、放射性廃棄物地中処分場の放射線学的安全性を評価する方法、処分場の立地条件および立地要件、処分場の最適立地法、等について検討した。まず第2節では、放射性廃棄物地中処分場から地中に漏出した放射性核種が、最終的に人間に摂取されるに至る生態学的連関を定式化し、人が受ける放射線の内部被曝線量を評価する方法を提案した。地中に処分された廃棄物に由来する放射性物質を人が摂取するに至る経路としては飲料水の飲用、農産物の摂取、水産物の摂取の3経路を考えた。合計電気出力が200万kWeのBWR型原子力発電所から発生する放射性廃棄物を20年分、全て地中に処分すると仮定して、提案した安全評価法に基づいて人が受ける被曝線量の程度を推定した。その結果、試算条件下において地中処分場の安全性を考える場合の決定経路は農産物摂取経路になる可能性が大きいこと、決定核種は ^{90}Sr , ^{110m}Ag になる可能性が大きいこと（半減期が短い核種であっても、安全性を考える場合には重要な核種になりうること）、廃棄物処分の方式によって人の被曝線量がかなり変化すること、推定被曝線量から考えて地

中処分法が放射性廃棄物の最終処分法として有望であること、等を明らかにした。第3節では、第2節で定式化した安全性の評価式に感度解析の手法を適用して、安全性を確保する立場からみた地中処分場の立地条件を明らかにした。地中処分場の立地条件については、従来から提案されているものもあるが、それらは定性的条件であるため、2つの条件が競合する場合にはいずれを優先させるべきかが不明である。本節では、ある条件の下に立地条件の優先順位を定めうることを明らかにし、標準的な環境条件下で、立地条件を定量的に評価した。また、地中処分場の安全性を迅速かつ簡便に評価するための方法として、評価図表と被曝線量の近似評価法を提案した。第4節では、第2節で定式化した安全性評価法を適用して、我国および諸外国の原子力施設32箇所の放射線学的安全性を同一基準で評価し、比較した。放射性廃棄物地中処分場の安全性は、処分場の周囲にどの程度の土地（非居住区域）があるかによって定まる傾向が強くなり、それ故我国よりも一般に土地に恵まれている諸外国の処分場の安全性は我国の施設の安全性にまさっているといえる。ただし、処分場から問題となる場所までの距離が大きいという条件は、他の環境条件、例えば地下水流速が遅いあるいは土壌の分配係数値が大きい等の条件によって代替することができる。これらの検討によって、我国においても適地を選定することによって廃棄物の地中処分場を十分に立地させることを明らかにした。第5節では、地中処分場の立地条件等を配慮して、その敷地が確保された場合に、廃棄物処分施設をどの位置に立地させるのが最も安全であるかを、電算機を用いて定める方法について検討した。地下水流速、核種の分配係数値、地層の空隙率等の環境因子が場所により異なる場合を想定し、それらの因子値が事前の調査によって把握されているものと仮定した。敷地内の任意の位置で放射性廃棄物を処分したとき、人が受ける内部被曝線量を計算し、被曝線量が最小または極小の位置に処分場を立地させることにした。最適立地位置の選定手順と選定例を示した。第6節では、廃棄物処分施設の周囲に設定するのが望ましい2種類の土地利用の制限区域を定める方法について検討した。第1の区域は地下水利用の禁止区域であり、第2の区域は第1の区域の外側に設定する地下水利用（灌漑用水としての利用）の規制区域である。環境条件が変化する場合についてもこれらの区域の設定例を示し、これらの区域の広さ（立地要件）が環境条件の変化によってどのように変化するかを明らかにした。

第5章では、放射性廃棄物地中処分場の周辺に配備すべきモニタリング・システムについて検討した。まず、非放射性物質の埋立処分によって発生している地下水系の汚染問題を研究・調査した成果を利用して、地下水汚染の特色を明らかにした。ついで、地中処分場の周辺に配備すべきモニタリング・システムの目的を設定した。前章までの検討と異なり、モニタリング・システムについて検討する場合には、どれ位の量の放射性核種がいつどの位置で地中へ漏出するかをあらかじめ想定することはできない。どのような事態が生じて、その事態があらかじめ設定しておく限度以上の影響を及ぼす可能性があるか、モニタリングによってその事態が検知されなければならない。それ故、モニタリング・システムを設計する場合に基礎にするデータは、実験室で行なう実験結果や数値シミュレーションの結果等からよりはむしろ現地で得られる野外観測結果から得るのが望ましい。本章では、まずモニタリングの項目に何を認めるのが有利であるかを判断するための考え方を示し、ついで地中処分場周辺のモニタリングを実施する場合に有効な情報を与えるであろう先行指標（物質）について検討した。地中処分場周辺で放射性物質をモニタリングするモニタリング系を、PRモニタリング系、動態モニタリング系、予知モニタリング系に区分して考えるのが有効であることを述べた。また、核種移

動の先行指標として⁹⁰Yを用いる場合を想定し、予知モニタリング系を設計する考え方と、その設計例を示した。原子力発電所周辺の局地気象の観測に比べると、局地的な地水圏環境を観測する技術・機器は極めて不足しており、基礎データの集積量も少ない。全モニタリング・システムを大部分既存のデータによる机上の計算に基いてあらかじめ配備しておく考え方が経済的にも技術的にもより有効であるとは、現段階では考えられない。

6.2 本研究の問題点と将来の研究課題

本研究は、放射性廃棄物を安全に地中処分するための処分体系を構成することを目的としている。研究目的を設定する段階で検討対象から除外した課題や、研究の進展と共に検討する必要があると思われたが十分に検討できなかった課題、あるいはほとんど研究できなかった課題が多く残された。ここでは、放射性廃棄物の処分体系を構成するという視点から、残された問題点を整理することにする。

放射性廃棄物の最終処分法は地中処分法だけではない。現在の技術でも実用可能な方法に海洋処分法がある。また廃棄物を処分に適した形態・状態に加工する処理方法、発生する廃棄物も種々ある。廃棄物の処分を合理的に実施するためには、廃棄物をどのように処理し処分するのが最も望ましいかを設計する必要がある。廃棄物管理計画の要件、その解決法等について具体的に検討する必要がある。

本論文では、廃棄物の処分によって生じるかもしれない人の放射線障害の程度を低く維持する、つまり放射線学的安全性を確保する立場から種々の検討を行なった。安全は放射線学的安全性のみによって判断することはできない。廃棄物処分問題を考える場合には放射線学的安全が確保されるべきことは不可欠の要件であるが、他にも経済性、技術的可能性、心理的影響等考慮すべき要因は多い。また放射性廃棄物の処分によって生じる影響は、放射線によって受ける影響だけでなく、非放射物質を処分するときに生じる環境影響を併せて受けることになる。これら多くの要因を考慮して、廃棄物処分計画を立案する手法を開発する必要がある。

本研究で提案した放射線学的安全性の評価方法は、廃棄物地中処分の安全性を評価する場合の有効な手段となる。ただし、放射性核種の環境中での移動を定式化した個々の式が実現象を記述する精度は統一されていない。また環境中での核種の個々の移行過程を定式化した評価式は、全てが野外の実データによって検証されている訳ではない。環境因子の統計的変動によって安全性の評価値がどのように変化するかを明らかにしておくという問題の他にも、採用した評価式（モデル）が適用できないような事態が生じたらどうなるかという、モデルの信頼性を定量的に明らかにする問題が残されている。本論文で提案した安全性評価法は、安全を一次的に評価する場合、例えば地中処分場の操業に先立ってその安全性を評価する場合に、適用できる方法であると考え。モニタリング・データ等を用いて、処分場の操業後に安全性を評価する場合にも適用できるようにするためには、処分場が立地する場所の局地的な環境特性等を考慮するなどの改良が必要と思われる。

本研究では、おおむね放射性核種がイオン状態で存在する場合について検討した。核種が非イオン状態で存在する場合については⁹⁰Yを用いて実験的に検討した。核種が非イオン状態で存在する場合あるいは非イオン状核種とイオン状核種とが共存する場合について、その地中での移動を統一的に論じる理論的研究の成果はまだ報告されていない。

放射性廃棄物の地中処分場を立地させる場合には当該候補地について事前調査を実施することにな

る。どのような項目について調査を実施する必要があるかは、本論文において示したが、その調査をどの程度の範囲で、どの程度正確に実施するべきかについては充分には検討できなかった。第4章で用いた感度解析の手法を用いれば、どの環境因子の測定にどの程度の優先度を与えるべきかは容易に定めることができる。優先度を放射線学的安全性に依拠して定める場合には、第4章で計算した感度および感度係数が大きな環境因子に大きな優先度を与えることになる。環境因子の測定方法は基準化しておくのが望ましい。

第5章で示したモニタリング・システムに関する検討は、必要な検討事項の一部にすぎない。得られたモニタリング・データの評価方法、その結果どのような行動をとるか等一貫したモニタリング・システムを完成するための研究が必要である。

論文中でも何度か指摘したように、放射性廃棄物の処分環境は人為的に改良することができる。止水壁、地下ダム、地下傘等による地下水移動の規制、薬剤を注入し土壌の陽イオン交換容量を増加させることによる核種移動の規制等が具体的に考えられる。それらの工学的防護処置の技術的可能性、経済性、有効性等に関する検討が必要である。

6.3 謝 辞

筆者が放射性廃棄物の地中処分に関する研究を開始したのは昭和44年、京都大学工学部衛生工学科特別研究のテーマに“強放射性廃液中核種の地中における挙動に関する研究”を選んだ時であった。学部卒業論文と修士論文を岩井重久教授、井上頼輝助教授（当時）の指導の下に作製することができた。以後、現在に至るまで井上頼輝教授の一貫した指導の下に、放射性廃棄物の地中処分に関する研究を実施し、本論文をとりまとめることができた。著者の研究を暖かく御指導下さった井上教授にまず謝意を表わします。また、京都大学原子炉実験所筒井天尊教授には本論文をとりまとめるのに当り貴重な御意見を賜わった。記して感謝の意を表わします。

研究の実施に際して、多くの方々の御協力を得た。特に第3章5節の実験では許邦福氏（現・台湾華城電機KK）、山口泰正氏（現・大阪府）の協力を、第3章6節および7節の実験では馬原保典氏（現・電力中央研究所）の協力を、また、第3章4節の実験では宮武法善氏（現・京都大学文学部学生）の協力を得た。記して関係者各位に感謝の意を表わします。

以上直接御協力下さった方々の他に、京都大学工学部衛生工学教室の皆様は、衛生工学に関する考え方について間接的に御教示をいただいた。また、衛生工学教室放射線衛生工学研究室の皆様には良好な研究環境を創出していただいた。ここに深く感謝の意を表わします。

最後に本研究の計算は、京都大学大型計算機センターのFACOM-230/75を用いて行なったことを付記します。

付録－1 世界の放射性廃棄物処分実績中に占める地中処分の位置づけ

公表された文献から、世界主要国における放射性廃棄物の処分実績を整理して表－A.1に示す。同表より、地中処分された放射性廃棄物量は $7.0 \times 10^7 Ci$ 、海洋処分された放射性廃棄物量は $3.5 \times 10^5 Ci$ である。それ故、処分された放射性廃棄物の全量 $(7.0 \times 10^7) + (3.5 \times 10^5) = 7.0 \times 10^7 Ci$ 中に占める地中処分量の割合は約99%になる。世界の実績からは、大部分の放射性廃棄物が地中処分法によって処分されているといえる。

表－A.1 主要国の放射性廃棄物処分の実績

| 処分法 | 国名 | 処分した廃棄物量 | 文献 |
|------|---------------------------|--|----------|
| 地中処分 | ・アメリカ合衆国 (～1975年末) | ・主要5国有処分場の合計 $1.7 \times 10^7 Ci$ ・民間6処分場の合計 $3.3 \times 10^6 Ci$ (計) $2.0 \times 10^7 Ci$ (ウラン、超ウラン元素廃棄物を含まない) | (1) |
| | ・カナダ (～1972年末) | ・チョーク・リバー原子力研究所 $3.1 \times 10^4 Ci$ (500日冷却のF.P.廃棄物に等価な放射能量) | (2) |
| | ・イギリス | ・ドリッグ処分場 $5.6 \times 10^3 Ci$ (1960年以來 $6250 yd^3/yr$ の割合で $60 mCi/yd^3$ の廃棄物を処分すると仮定して計算) | (3), (4) |
| | ・ソヴィエト (～1970年) | ・メレケス(廃液地下注入処分場) $5 \times 10^7 Ci$ | (5) |
| 海洋処分 | ・アメリカ合衆国 (1946～1969) | ・大西洋 $4.6 \times 10^4 Ci$ 、太平洋 $1.5 \times 10^4 Ci$ (計) $6.1 \times 10^4 Ci$ | (1) |
| | ・ENEA(NEA) (1967～1976) | ・北大西洋(第1回～第8回処分) $2.9 \times 10^5 Ci$ | (1) |

(注)1 沿岸放流される放射性液体廃棄物は海洋処分に含めていない。

(注)2 1967年以前に英国が実施した海洋処分を含まない。

(注)3 ソヴィエトで実施されている固体廃液物の地中処分を含まない。

付録 1 の参考文献

- (1) (財)原子力環境整備センター：低レベル放射性廃棄物の処理・処分に関するフィージビリティ調査報告書（昭和51年度），（1977）
- (2) W.F. Merritt and C.A. Mawson : Retention of Radionuclides Deposited in the Chalk River Nuclear Laboratories Waste Management Areas, AECL-4510, (1973)
- (3) H. Howells : Trench Disposal of Solid Radioactive Waste from the Windscale and Calder Works of the UKAEA, IAEA/ENEA Proc. Symp., Vienna, SM-93/2, pp.3-15, (1967)
- (4) P.J. West : Operational Experience in the Handling, Treatment and Disposal of Radioactive Waste at a Research and Development Establishment, Proc. Symp., Aix-en-Provence, IAEA/ENEA, SM-137/8, pp.235-246, (1970)
- (5) W. Fild and H. Krause : Deep Well Disposal of Tritium Containing Liquid Effluent, Proc. Symp., Paris, IAEA/NEA, (1972)

付録— 2 第 4 章 3 節 評価図表の数学的基礎に関する補遺

基準状態 x_0 から dx 離れた状態 $x = x_0 + dx$ における内部被曝線量 $Ds(x; P)$ を簡単に式(1)で、また基準状態 x_0 における被曝線量を式(2)で表わす。

$$Ds(x; P) = f(x_1, x_2, \dots, x_n) \equiv f(x) \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$Ds_0(x_0; P) = f(x_{10}, x_{20}, \dots, x_{n0}) \equiv f(x_0) \quad \dots\dots\dots (2)$$

状態変数 x のうち i 番目の変数 x_i のみが変化し、他は基準状態にある場合の内部被曝線量 Ds_i を

$$Ds_i(x_i; P) \equiv f(x_i) \quad \dots\dots\dots (3)$$

で表わす。 Ds_i の定義式(3)により、変数 x_i が基準状態の値 x_{i0} をとる場合には、

$$Ds_{i0}(x_{i0}; P) \equiv f(x_{i0}) = Ds_0 \quad \dots\dots\dots (4)$$

となる。式(3)を $x_i = x_{i0}$ の周囲に Taylor 展開すると次式を得ることができる。

$$f(x_i) = f(x_{i0}) + \frac{\partial f}{\partial x_i} dx_i + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 f}{\partial x_i^2} dx_i^2 + \dots\dots\dots (5)$$

式(5)を i について加え合わせて整理すると、式(3)、式(4)より

$$\sum_{i=1}^n (Ds_i - Ds_0) = \sum_{i=1}^n \frac{\partial f}{\partial x_i} dx_i + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \frac{\partial^2 f}{\partial x_i^2} dx_i^2 + \dots\dots\dots (6)$$

を得る。第 4 章 3 節では式(6)の左辺 $Ds_i - Ds_0 = f(x_i) - f(x_0)$ を i 毎に厳密計算し、変数 x_i に対応する数だけの評価定規を作製し、評価図表とした。

一方、式(1)を基準状態 $x = x_0$ の周囲に Taylor 展開すると次式を得ることができる。

$$f(x) = f(x_0) + \sum_{i=1}^n \frac{\partial f}{\partial x_i} dx_i + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \frac{\partial^2 f}{\partial x_i \partial x_j} dx_i dx_j + \dots\dots\dots (7)$$

式(1)と式(2)との差を ΔDs と定義する、つまり

$$\Delta Ds \equiv Ds - Ds_0 = f(x) - f(x_0) \quad \dots\dots\dots (8)$$

とすれば、式(7)より

$$\Delta Ds = \sum_{i=1}^n \frac{\partial f}{\partial x_i} dx_i + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \frac{\partial^2 f}{\partial x_i \partial x_j} dx_i dx_j + \dots\dots\dots (9)$$

を得る。式(9)から式(6)を辺々相引くことによって次式を得る。

$$\begin{aligned} \Delta Ds - \sum_{i=1}^n (Ds_i - Ds_0) &= \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \frac{\partial^2 f}{\partial x_i \partial x_j} dx_i dx_j + \dots\dots\dots \\ &= y \cdot A \cdot y^t \quad \dots\dots\dots (10) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\text{ただし, } \mathbf{y} &= (dx_1, dx_2, \dots, dx_n) \\
&= (x_1 - x_{10}, x_2 - x_{20}, \dots, x_n - x_{n0}) \\
\mathbf{y}^t &= \mathbf{y} \text{ の転置列ベクトル} \\
A &= \begin{pmatrix} 0 & f_{12} & f_{13} & \dots & f_{1n} \\ & f_{23} & \dots & f_{2n} \\ & & \dots & \vdots \\ 0 & & & & 0 \end{pmatrix}, f_{ij} = \partial^2 f / \partial x_i \partial x_j
\end{aligned}$$

すなわち、式(10)は第4章3節式(4-29)と一致する。式(10)の右辺は $f_{ij} = f_{ijk} = \dots = 0$ のときにゼロになり、このときは各評価定規に与えられた評価点数の総和が厳密に ΔD_s に等しくなる。行列 A の要素 f_{ij} の値は式(4-29)のベクトル \mathbf{y} に対応して次のように定まる。

$$\begin{aligned}
f_{1,2} &= 1.2 \times 10^{-6}, & f_{1,3} &= 3.7 \times 10^{-4}, & f_{1,4} &= -2.1 \times 10^{-1}, & f_{1,5} &= -2.1 \times 10^{-1} \\
f_{1,6} &= 1.5 \times 10^{-1}, & f_{1,7} &= -1.1, & f_{1,8} &= 1.1 \times 10^{-2}, & f_{1,9} &= -8.0 \times 10^{-1} \\
f_{1,10} &= -5.0 \times 10, & f_{1,11} &= 4.6, & f_{1,12} &= 0
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
f_{2,3} &= -1.9 \times 10^{-12}, & f_{2,4} &= -2.6 \times 10^{-5}, & f_{2,5} &= -7.8 \times 10^{-5}, & f_{2,6} &= 2.3 \times 10^{-5} \\
f_{2,7} &= 0, & f_{2,8} &= 1.5 \times 10^{-6}, & f_{2,9} &= -2.9 \times 10^{-4}, & f_{2,10} &= -6.9 \times 10^{-3} \\
f_{2,11} &= 6.3 \times 10^{-4}, & f_{2,12} &= 0
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
f_{3,4} &= -8.3 \times 10^{-3}, & f_{3,5} &= -2.5 \times 10^{-2}, & f_{3,6} &= 6.8 \times 10^{-3}, & f_{3,7} &= -4.5 \times 10^{-2} \\
f_{3,8} &= 4.7 \times 10^{-4}, & f_{3,9} &= -9.3 \times 10^{-2}, & f_{3,10} &= -2.2, & f_{3,11} &= 2.0 \times 10^{-1} \\
f_{3,12} &= 0
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
f_{4,5} &= 1.4 \times 10, & f_{4,6} &= -3.9, & f_{4,7} &= 2.6 \times 10, & f_{4,8} &= -2.6 \times 10^{-1} \\
f_{4,9} &= 5.1 \times 10, & f_{4,10} &= 1.3 \times 10^3, & f_{4,11} &= -1.2 \times 10^2, & f_{4,12} &= 0
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
f_{5,6} &= -1.0 \times 10, & f_{5,7} &= 7.3 \times 10, & f_{5,8} &= -7.4 \times 10^1, & f_{5,9} &= 5.3 \times 10 \\
f_{5,10} &= 3.3 \times 10^3, & f_{5,11} &= -3.0 \times 10^2, & f_{5,12} &= 0
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
f_{6,7} &= -2.1 \times 10, & f_{6,8} &= 2.1 \times 10^{-1}, & f_{6,9} &= -3.8 \times 10, & f_{6,10} &= -9.9 \times 10^2 \\
f_{6,11} &= 9.1 \times 10, & f_{6,12} &= 0
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
f_{7,8} &= -1.4, & f_{7,9} &= 2.7 \times 10^2, & f_{7,10} &= 6.8 \times 10^3, & f_{7,11} &= -6.3 \times 10^2 \\
f_{7,12} &= 0
\end{aligned}$$

$$f_{8,9} = -2.8, \quad f_{8,10} = -6.9 \times 10, \quad f_{8,11} = 6.3, \quad f_{8,12} = 0$$

$$f_{9,10} = 1.2 \times 10^4, \quad f_{9,11} = -1.1 \times 10^3, \quad f_{9,12} = 0$$

$$f_{10,11} = -2.9 \times 10^4, f_{10,12} = 0$$

$$f_{11,12} = 0$$

式(4-29)を用いて被曝線量を補正する場合はベクトル y の要素の単位は $\text{cm} \cdot \text{g} \cdot \text{day}$ 系を用いる。

付録 - 3 原子力施設の安全性調査に用いた調査表

SURVEY ON THE GROUND DISPOSAL YARD OF RADIOACTIVE WASTES

Please fill in all blanks if possible. If information is not applicable or not known, so state.

I. General

1. Name of nuclear facility; _____.
2. Address; _____.
3. Area of nuclear facility; _____ [km²].
4. Area of ground disposal yard; _____ [km²].
5. Nuclear facility is located inland, along a coast, along a river,
 desert, salt cave, others (_____).

II. Geological conditions on the ground disposal yard

1. The yard faces on the north to sea, lake, river, inland.
on the east to sea, lake, river, inland.
on the west to sea, lake, river, inland.
on the south to sea, lake, river, inland.
2. Base formations (or base rock) of the yard
Base formations is about _____ [m] deep from a ground surface.
Gradient of base formations is about _____ [%] toward _____ direction.
3. Surface and sub-surface soil of the yard consists mainly of
clay, silt, fine sand, coarse sand,
fractured rock, limestone, loam,
equal amount of clay and sand.
4. Ground water under the yard
The ground water is free surface ground water,
 pressurized ground water,
 others (_____).
The ground water table is about _____ [m] deep from a ground surface.
The thickness of the zone of ground water is about _____ [m].
The flow rate of ground water ranges between _____ and _____ [m/day].
The ground water flows toward sea, lake, river, inland and
the distance from the disposal yard to the surface water is about _____ [km].
The ground water (is, is not) used for drinking.
(is, is not) used for irrigation.

5. Quality of ground water

Hardness _____ [ppm as CaCO₃]

M-alkalinity _____ [ppm as CaCO₃]

pH _____ (___ acid, ___ neutral, ___ alkaline)

Other remarkable property of ground water _____.

■. Weather conditions

1. Annual rainfall is about _____ [mm/yr],

2. Maximum monthly rainfall is about _____ [mm/month] on _____.

■. Other conditions

1. The shortest distance from the disposal yard to the nearest boundary of the nuclear facility is about _____ [km].

2. The shortest distance from the disposal yard to the nearest populated area is about _____ [km].

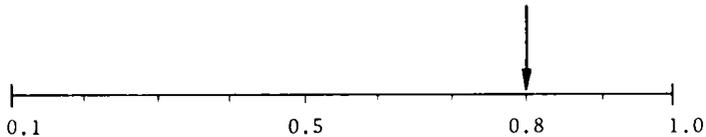
3. The distribution factor between soil and ground water

for ⁹⁰Sr is about _____ [ml/g].

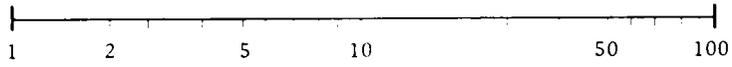
for ⁶⁰Co is about _____ [ml/g].

for ¹³⁷Cs is about _____ [ml/g].

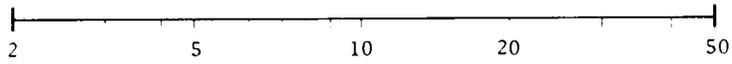
EXAMPLE for checking in the Rating Chart on next two sheets. Please check in the Rating Chart using an arrow; if the degree of saturation of an aerated zone in your disposal yard is in average 0.8, put the arrow on the corresponding chart like below.



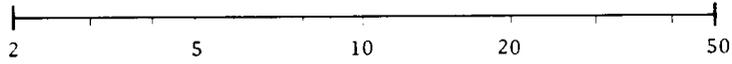
Degree of saturation of an aerated zone



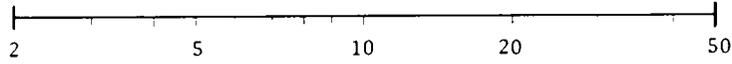
Thickness of an aerated zone [m]



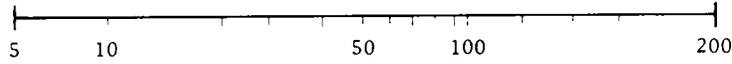
Distance to the well for drinking water [km]



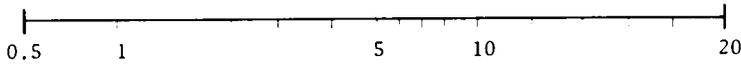
Distance to the well for irrigation [km]



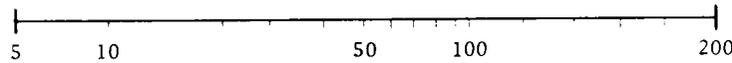
Distance to the sea, lake or river [km]



Flow rate of ground water [m/day]



Infiltration rate of rain water [cm/day]



Distribution factor of a nuclide [ml/g]

